ORSAY
n° d'ordre:

THESE

DE DOCTORAT D'ETAT ES-SCIENCES PHYSIQUES

PRESENTEE A L'UNIVERSITE DE PARIS-SUD

CENTRE D'ORSAY

PAR

Monsieur Abdelouahab TALEB

LABORATOIRE AIME COTTON
C. N. R. S.

POUR OBTENIR

LE GRADE DE DOCTEUR ES-SCIENCES

CONTRIBUTION EXPERIMENTALE A L'ETUDE DES ETATS
TRES EXCITES D'ATOMES ALCALINS EN PRESENCE
DE CHAMPS ELECTRIQUE OU ELECTROMAGNETIQUE INTENSES

SOUTENUE LE 2 juillet 1982 DEVANT LA COMMISSION D'EXAMEN

MM.	P. JACQUINOT	Président
	J. BAUDON	
	M. DESAINTFUSCIEN	
	S. LIBERMAN	
Mme	E. LUC-KOENIG	
MM.	J. PINARD	
	B. SANSAL	

ORSAY
n° d'ordre:

THESE

DE DOCTORAT D'ETAT ES-SCIENCES PHYSIQUES

PRESENTEE A L'UNIVERSITE DE PARIS-SUD

CENTRE D'ORSAY

PAR

Monsieur Abdelouahab TALEB

LABORATOIRE AIME COTTON
C.N.R.S.

POUR OBTENIR

LE GRADE DE DOCTEUR ES-SCIENCES

CONTRIBUTION EXPERIMENTALE A L'ETUDE DES ETATS
TRES EXCITES D'ATOMES ALCALINS EN PRESENCE
DE CHAMPS ELECTRIQUE OU ELECTROMAGNETIQUE INTENSES

SOUTENUE LE 2 juillet 1982 DEVANT LA COMMISSION D'EXAMEN

MM.	P. JACQUINOT	Président
	J. BAUDON	
	M. DESAINTFUSCIEN	
	S. LIBERMAN	
Mme	E. LUC-KOENIG	
MM.	J. PINARD	
	B. SANSAL	

UNIV.
LEIDEN
BIBL.

TABLE DES MATIERES

INTRODUCTION 1

Chapitre I : EFFET STARK DANS L'HYDROGENE ET LES ALCALINS 7

A - CAS DE L'ATOME D'HYDROGENE 9

A1 - Mouvement dans un champ coulombien. Coordonnées paraboliques 9

A2 - Effet Stark dans l'atome d'hydrogène 11

A2-1 Etude de la surface d'énergie potentielle. Seuil d'ionisation classique 13

A2-2 Atome d'hydrogène en coordonnées paraboliques 19

a) : Champ faible : Résolution par la théorie des perturbations 20

b) : Mouvement suivant la coordonnée ξ : nombres quantiques exacts 23

c) : Mouvement suivant la coordonnée η : seuil d'ionisation en coordonnées paraboliques 27

A2-3 Structure du spectre Stark de l'atome d'hydrogène 29

A2-4 Symétrie dans le spectre Stark de l'hydrogène 36

A2-5 Densité d'états 40

A2-6 Oscillations dans la densité totale d'états $C^{|m_\ell|}(E)$ 45

A2-7 Densité de forces d'oscillateurs dans le spectre de photoionisation 48

B - CAS DES ATOMES ALCALINS 59

Introduction 59

B1 - Influence des électrons du coeur sur la structure des spectres à un électron optique 59

B2 - Caractéristiques de l'effet Stark dans les atomes alcalins 64

Chapitre II : DESCRIPTION DU DISPOSITIF EXPERIMENTAL 77

A - LE JET ATOMIQUE 80

A1 - L'enceinte. Le vide 80

A2 - Le four. Les diaphragmes froids. Le détecteur 81

A3 - La zone d'interaction avec la lumière. La détection des ions 83

B - LASER MONOMODE PULSE 86

B1 - Principe du laser à injection 86

B2 - Réalisation d'un laser monomode pulsé 92

B2-1 Description du laser monomode pulsé 92

B2-2 Le doublage en fréquence 96

B2-3 Balayage en fréquence du laser continu 97

B2-4 Performances et conclusion 99

Chapitre III : ETUDE AU VOISINAGE DE LA LIMITE D'IONISATION CLASSIQUE $E_c = -2\sqrt{F}$ 101

A - DETERMINATION EXPERIMENTALE DE LA LIMITE D'IONISATION CLASSIQUE 104

B - INFLUENCE DU NOMBRE QUANTIQUE $|m_\ell|$ SUR L'ENERGIE CRITIQUE D'IONISATION 114

C - SPECTRES DE PHOTOIONISATION DU RUBIDIUM EN EXCITATION Π et σ 119

1 - Spectres de photoionisation Π et σ au voisinage de la limite d'ionisation classique 123

2 - Evolution des spectres de photoionisation Π et σ 124

D - OBSERVATION DES PROFILS DE FANO DANS LE SPECTRE DE PHOTOIONISATION EN PRESENCE D'UN CHAMP CONTINU 126

D-1 Description d'une interaction entre un niveau discret et un continuum 127

D-2 Profils de Fano dans un spectre de photoionisation .. 142

- Atome de rubidium 143

- Atome de sodium 146

E - STABILISATION DE CERTAINS NIVEAUX STARK DE L'ATOME DE RUBIDIUM 150

1 - Diagramme des niveaux Stark du rubidium 151

2 - Mesure de la durée de vie à l'ionisation 157

3 - Etude de la vitesse d'ionisation en fonction du champ électrique 167

- cas de l'atome d'hydrogène 167

- cas d'un atome non hydrogénoïde 168

4 - Interprétation des résultats expérimentaux 174

Chapitre IV : ETUDE AU VOISINAGE DE LA LIMITE D'IONISATION EN CHAMP NUL E = 0 183

A - SECTION EFFICACE DE PHOTOIONISATION EN PRESENCE D'UN CHAMP ELECTRIQUE AU VOISINAGE DE LA LIMITE D'IONISATION SANS CHAMP : MODELES QUANTIQUE ET CLASSIQUE 186

A1 - Modèle hydrogénoïde de la densité de forces d'oscillateurs : Modèle quantique 186

A2 - Modèle de la densité des états du continuum : Modèle classique 189

B - SECTION EFFICACE DE PHOTOIONISATION EN PRESENCE D'UN CHAMP ELECTRIQUE DE L'ETAT EXCITE $3\,^2P_{3/2}$ $F=3$ $M_F=3$ DE L'ATOME DE SODIUM (alcalin léger) 197

B1 - Dispositif expérimental 201

B1-1 Pompage optique 201

B1-2 Choix et réalisation des polarisations expérimentales 204

B1-3 Montage expérimental 205

B2 - Spectres de photoionisation dans le domaine des énergies négatives proches de $E = 0$ 211

B2-1 Formes des raies. Evolution avec $|m_\ell|$ 211

B2-2 Identification des résonances 214

B3 - Brisure de la symétrie de révolution autour de la direction du champ électrique F 218

B3-1 Interaction spin-orbite dans les états excités 219

B3-2 Perturbation de l'état $3\,^2P_{3/2}\ F=3\ M_F=3$ due au champ électrique 220

B3-3 Influence du champ magnétique terrestre 223

a) Effet paramagnétique sur l'état $3\,^2P_{3/2}\ F = M_F = 3$ 224

b) Mise en évidence expérimentale de l'influence du champ magnétique terrestre sur les états excités 225

B4 - Spectres de photoionisation dans le domaine des énergies positives proches de $E = 0$ 229

C - SECTION EFFICACE DE PHOTOIONISATION EN PRESENCE D'UN CHAMP ELECTRIQUE DE L'ETAT EXCITE $5\,^2P_{3/2}\ F=4\ M_F=4$ DE L'ATOME DE RUBIDIUM (alcalin lourd) 243

C1 - Dispositif expérimental 244

C1-1 Pompage optique. Choix des polarisations. Effet isotopique 244

C1-2 Pureté de l'état intermédiaire 245

C2 - Spectres de photoionisation dans le domaine des énergies négatives proches de $E = 0$ 247

C2-1 Formes des raies 247

C2-2 Identification des raies. Mise en évidence expérimentale de l'influence de l'interaction spin-orbite sur les états excités 249

C3 - Rôle joué par l'interaction spin-orbite dans les états de Rydberg du rubidium 251

C3-1 Phénomènes liés à l'importance du spin-orbite dans les états de Rydberg du rubidium 251

C3-2 Etude des profils 254

ANNEXE : CALCUL DES POPULATIONS DES SOUS-NIVEAUX ZEEMAN 265

Chapitre V : INTERACTION DES ETATS EXCITES DU RUBIDIUM AVEC UN CHAMP ELECTROMAGNETIQUE INTENSE NON RESONNANT 269

1 - CONDITIONS DE MISE EN EVIDENCE DU DEPLACEMENT EN ENERGIE 271

1° - Le déplacement du niveau fondamental 273

2° - Le déplacement du niveau de Rydberg par les niveaux profonds de l'atome 273

2 - DISPOSITIF EXPERIMENTAL 275

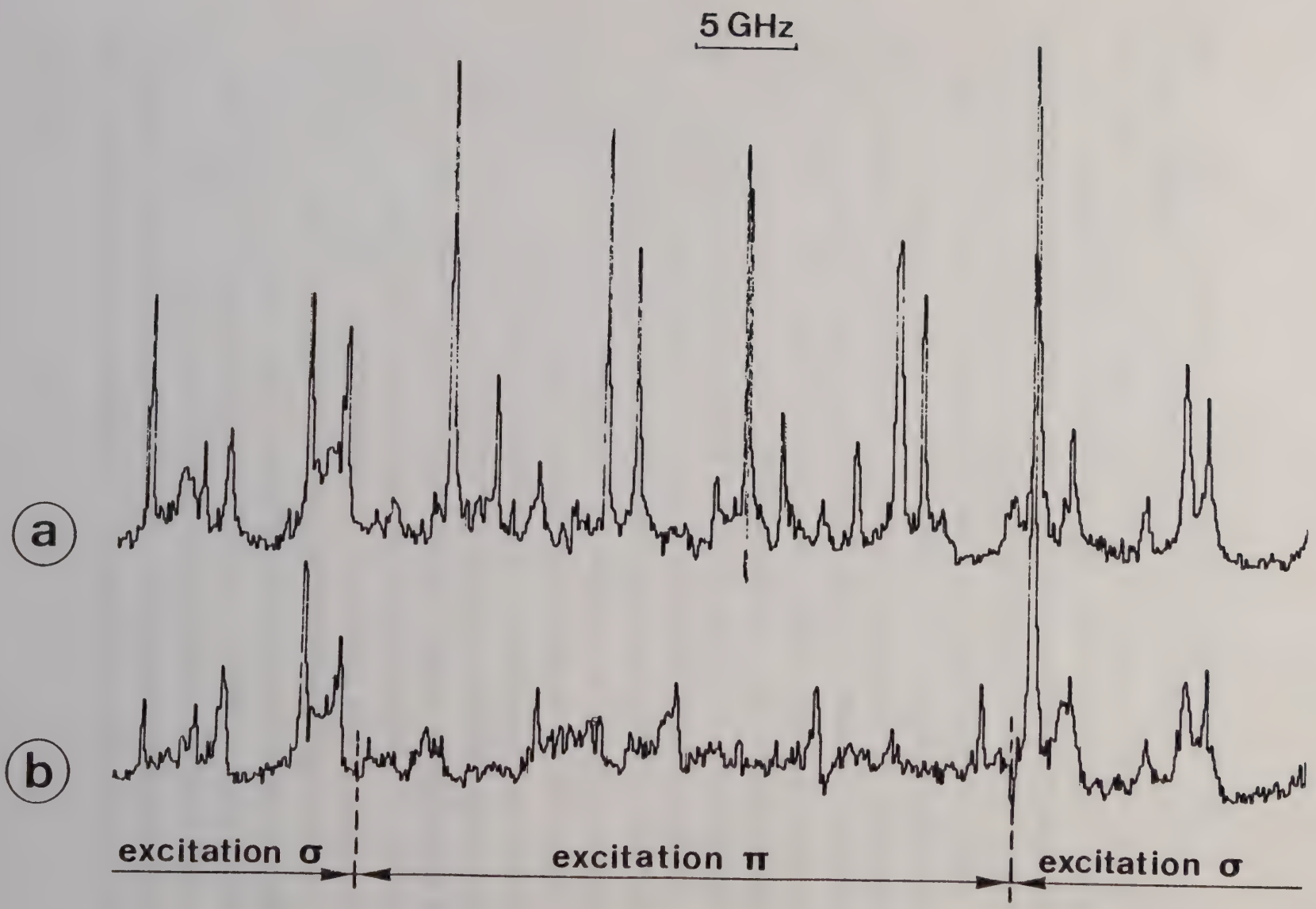
3 - RESULTATS EXPERIMENTAUX 277

CONCLUSION GENERALE 283

BIBLIOGRAPHIE 287

INTRODUCTION

L'avènement dans la dernière décade d'une grande variété de lasers accordables, a suscité l'intérêt des chercheurs non seulement pour la mise en œuvre de nouvelles méthodes de spectrométrie laser, mais aussi pour l'étude de nouvelles espèces atomiques ou moléculaires. C'est qu'en effet la grande pureté spectrale désormais accessible ou bien les grandes densités de puissances lumineuses disponibles permettent d'envisager des études dans lesquelles la haute résolution et la haute sensibilité peuvent être réunies. C'est ainsi, par exemple, que des techniques de spectrométrie laser à haute résolution ont permis l'étude extensive de nombreux isotopes radioactifs, dont quelques uns, produits en quantités très faibles, avaient en outre des durées de vie extrêmement brèves [1, 2]. Ces expériences, faites en ligne derrière des accélérateurs, ont ainsi nécessité la mise au point de techniques de détection de très haute sensibilité. De la même façon, l'éclosion de ces nouvelles méthodes essentiellement basées sur l'utilisation de lasers, a permis de s'intéresser à ces espèces très particulières que constituent les atomes de Rydberg, qui, comme on sait, sont des atomes excités sur des niveaux de nombre quantique principal n très élevé. Ces atomes présentent en effet d'étonnantes propriétés [3]. Mesurée à compter de la limite d'ionisation, l'énergie de ces niveaux varie comme n^{-2}, en sorte que très naturellement leur énergie de liaison est d'autant plus faible que n est plus grand. Cette faible énergie de liaison leur confère d'ailleurs une fragilité qui peut être mise à profit dans des interactions externes. Leur durée de vie radiative varie, elle, comme n^3 ; c'est dire qu'elle peut être relativement longue pour des valeurs de n assez élevées ($\tau = 1$ ms pour $n = 100$) et permettre d'étudier de tels niveaux dans des conditions expérimentales suffisamment confortables. En revanche, de telles durées de vie



Comparaison de deux enregistrements du spectre de photoionisation du rubidium en présence de champ : a) spectre effectué en excitation σ , b) spectre effectué en excitation Π .

radiatives ont pour origine des probabilités de transition faibles et, notamment, avec le niveau fondamental, ce qui rend difficile leur excitation optique à partir de ce niveau. Seules des sources lumineuses présentant de grandes densités spectrales d'énergie permettent de peupler ces états de Rydberg de façon efficace. Enfin, la dimension de ces atomes, représentée par la valeur moyenne du rayon de l'orbite correspondante de l'électron excité, varie comme n^2 : pour $n = 100$ par exemple, l'atome a un diamètre moyen de l'ordre de 1 µm . On comprend, dans ces conditions, comment de telles dimensions, inusuelles pour des atomes, peuvent leur conférer des propriétés spécifiques, notamment en ce qui concerne les processus collisionnels [4, 5, 6, 7, 8]. En outre leur fragilité, jointe à leur grande dimension, leur donne une sensibilité particulière à toute perturbation extérieure : leur polarisabilité électrique par exemple, qui mesure en quelque sorte leur sensibilité à un champ électrique statique, varie comme n^7 . C'est dire que des effets de champs forts pourront être étudiés sur de tels atomes avec des intensités modestes. C'est dire aussi que de tels atomes pourront, dans certaines conditions, être utilisés comme des détecteurs extrêmement sensibles [9]. Or, précisément, peu de résultats expérimentaux ont pu être obtenus concernant l'interaction des atomes avec des champs intenses. Et, de même, peu d'investigations théoriques avaient été menées dans ce domaine. D'ailleurs, les premières expériences effectuées sur des atomes de Rydberg en présence d'un champ électrostatique intense [10] ont montré des effets qui ont rapidement suscité l'intérêt et l'activité de nombreux groupes. Dans ces expériences les atomes d'un jet de Rb étaient excités par absorption d'un photon U.V. (fourni par un faisceau laser dont la fréquence était doublée dans un cristal non linéaire , suivant un montage qui sera décrit de façon détaillée dans le Chapitre II de ce mémoire), et ceci en présence d'un champ statique permanent. La fréquence du laser était balayée de sorte que l'énergie correspondante se situe au-delà de la nouvelle limite d'ionisation de l'atome. On enregistrait ainsi le spectre de photoionisation de l'atome en présence de champ. Comme le montre la figure (page 2) ce spectre présentait de nombreuses résonances ,

très étroites et, de plus, sensibles à la polarisation de la lumière excitatrice. En outre, ces enregistrements montraient la sélectivité isotopique de ces résonances et, du même coup, l'intérêt qu'elles pouvaient présenter dans l'élaboration d'un procédé de séparation isotopique par laser. Quoi qu'il en soit, la compréhension de tous ces phénomènes incitait à un effort particulier aussi bien expérimental que théorique. C'est dans cette perspective que se situe l'objet du présent travail.

L'exposé qui suit rend compte de ces travaux. Pour en rendre la compréhension plus aisée, un premier chapitre rappelle les propriétés d'ionisation par champ de l'atome d'hydrogène ainsi que celles des atomes alcalins, en soulignant les effets dus au coeur atomique qui conduisent à des propriétés distinctes de celles de l'atome d'hydrogène. Dans un deuxième chapitre, on a regroupé la description des principales caractéristiques techniques qui ont été mises en oeuvre dans nos expériences et qui concernent principalement la source laser et le jet atomique. Le troisième chapitre donne les résultats de nos études à haute résolution de la photoionisation en présence du champ au voisinage de la nouvelle limite d'ionisation. Comme on le verra, nous avons pu mettre en évidence plusieurs phénomènes non observés auparavant, qu'il s'agisse de résonances à profils dissymétriques typiques (profils de Fano) ou encore d'effets de stabilisation temporelle de certains niveaux.

Le quatrième chapitre contient les résultats d'études effectuées sur des atomes de Na ou encore de Rb concernant les propriétés de photoionisation en présence de champ, au voisinage de la limite d'ionisation en champ nul. Cette étude a notamment permis de préciser le rôle du couplage spin-orbite dans ces phénomènes.

Enfin, dans un dernier chapitre, nous décrivons une expérience nouvelle dans laquelle on a étudié les effets de l'interaction d'un atome de Rydberg avec la perturbation que constitue un champ électro-

magnétique intense, dans le cas où ce champ est loin de toute résonance atomique. Cette interaction se traduit par des déplacements lumineux qui, dans le cas étudié, ont pu donner lieu à des mesures quantitatives.

Chapitre I

EFFET STARK DANS L'HYDROGENE ET LES ALCALINS

De toutes les méthodes utilisées pour détecter des atomes dans des niveaux de Rydberg, la méthode d'ionisation par champ électrique est probablement la plus efficace ; aussi, de nombreuses études théoriques et expérimentales ont porté, d'une part sur le comportement d'atomes en présence d'un champ électrique (spectroscopie Stark) et, d'autre part sur le mécanisme d'ionisation de ces atomes par un champ électrique.

Les études théoriques développées portent essentiellement sur le comportement de l'atome d'hydrogène soumis à un champ électrique. En effet, il est possible d'obtenir les solutions exactes de ce problème, quelle que soit l'intensité du champ électrique comparée à celle du champ électrique coulombien apparaissant dans l'étude de l'atome isolé.

Quant aux résultats expérimentaux, ils concernent en général des atomes alcalins portés dans des états hautement excités. L'intérêt présenté par l'exemple des atomes alcalins est dû au fait qu'il s'agit d'atomes à un électron optique ayant des spectres particulièrement simples : l'électron optique est soumis à un potentiel à symétrie sphérique créé par le noyau et les électrons des couches complètes. On peut, par conséquent, ne pas tenir compte explicitement des interactions électrostatiques entre électrons, interactions dont l'analyse est particulièrement complexe.

La plupart des propriétés des états excités (énergie, polarisabilité,...) peuvent être considérées avec une très bonne approximation comme étant hydrogénoïdes, parce que le potentiel vu par l'électron optique est coulombien pour des orbites suffisamment excitées.

Par conséquent, on espérait pouvoir interpréter simplement les expériences concernant les états de Rydberg d'atomes alcalins à partir des résultats du calcul hydrogénoïde.

Cependant, l'analyse des résultats expérimentaux a montré que les propriétés d'ionisation par un champ électrique de l'atome d'hydrogène étaient très différentes de celles de tous les autres atomes.

Pour expliquer l'origine d'une telle différence de comportement, il est nécessaire d'analyser tout d'abord les propriétés du spectre de l'atome d'hydrogène puisque, dans ce cas, on dispose de résultats de calculs exacts qui ne font appel à aucune hypothèse simplificatrice.

Dans une première partie, nous rappellerons les propriétés de l'effet Stark de l'atome d'hydrogène en négligeant le spin de l'électron.

A - CAS DE L'ATOME D'HYDROGENE

A 1 . MOUVEMENT DANS UN CHAMP COULOMBIEN - COORDONNEES PARABOLIQUES

L'équation de Schrodinger du mouvement d'une particule dans un champ central quelconque est séparable en coordonnées sphériques. Les constantes du mouvement sont, outre l'énergie, le carré du moment cinétique $\ell\ (\ell + 1)$ et sa projection m_ℓ sur l'axe de quantification Oz.

Dans le cas de l'atome d'hydrogène où le potentiel d'interaction est coulombien, la séparation des variables est aussi possible en coordonnées paraboliques $\xi = r + z$, $\eta = r - z$ et $\phi = \text{Arctang } \frac{y}{x}$ [3].

La résolution de l'équation de Schrodinger en coordonnées paraboliques montre que chaque état du spectre discret est déterminé par trois entiers : les nombres quantiques paraboliques n_1 et n_2 et le nombre quantique magnétique m_ℓ ($n = n_1 + n_2 + |m_\ell| + 1$ où n est le nombre quantique principal); les fonctions d'ondes normalisées $\psi_{n_1 n_2 m_\ell}$ du spectre discret sont :

$$\psi_{n\, n_1 n_2 m_\ell} = \left[N_{n\, n_1 n_2 m_\ell}\right]^{1/2} u_1(\xi)\, u_2(\eta) \,.\, e^{i m_\ell \phi} \quad \text{où}$$

$$u_1(\xi) = e^{-\frac{1}{2}\varepsilon\xi}\, \xi^{\frac{m_\ell}{2}} \,.\, L^{m_\ell}_{n_1 + m_\ell}(\varepsilon\xi)$$

$$u_2(\eta) = e^{-\frac{1}{2}\varepsilon\eta}\, \eta^{\frac{m_\ell}{2}} \,.\, L^{m_\ell}_{n_2 + m_\ell}(\varepsilon\eta)$$

$$E = -\frac{1}{2}\varepsilon^2 = -\frac{1}{2n^2}$$

$L_r^s(x)$ polynôme de Laguerre généralisé

$\left[N_{n\ n_1 n_2 m_\ell}\right]^{1/2}$ constante de normalisation

Leur forme devient relativement simple au voisinage de l'origine ($\xi = \eta \simeq o$) :

$$\psi_{n\ n_1 n_2 m_\ell} = \left[N_{n\ n_1 n_2 m_\ell}\right]^{1/2} (\xi\eta)^{\frac{m_\ell}{2}} e^{im_\ell \phi}$$

La séparation des variables en coordonnées paraboliques est liée à la supersymétrie du potentiel coulombien : dans le cas de l'hydrogène l'hamiltonien commute avec M_z, la projection du vecteur de Runge-Lenz $\vec{M} = \vec{p} \wedge \vec{L} - \frac{\vec{r}}{r}$ sur l'axe Oz, dont les valeurs propres sont égales à $(n_1 - n_2)$.

Ces fonctions d'ondes, à la différence des fonctions d'ondes en coordonnées sphériques, ne sont pas symétriques par rapport au plan $z = o$; pour $n_1 > n_2$, la probabilité que la particule se trouve du côté des $z > o$ est plus grande que du côté des $z < o$, et c'est le contraire qui a lieu pour $n_1 < n_2$ [3].

Pour des nombres quantiques n et m_ℓ fixés, ces fonctions propres paraboliques $|n\ n_1 n_2 m_\ell\rangle$ s'écrivent comme des combinaisons linéaires des fonctions propres sphériques $|n\ell m_\ell\rangle = R_{n\ell}\ Y_{\ell m_\ell}$:

$$|n\ n_1 n_2 m_\ell\rangle = \sum_{\ell=|m_\ell|}^{n-1} a_{n\ell}^{n_1 m_\ell} |n\ell m_\ell\rangle$$

A 2. EFFET STARK DANS L'ATOME D'HYDROGENE

En l'absence de tout effet relativiste, l'équation de Schrodinger pour l'atome d'hydrogène ou pour les atomes hydrogénoïdes de charge nucléaire Z, et dont le degré d'ionisation est égal à Z-1, placés dans un champ électrique uniforme F parallèle à l'axe Oz, est encore séparable en coordonnées paraboliques ; dans ce cas particulier, le problème est en principe exactement soluble, mais sa résolution s'est heurtée pendant longtemps à des difficultés de calcul numérique.

C'est ainsi que de nombreux calculs ont été menés d'abord dans le cadre de la théorie des perturbations pour des champs électriques faibles [3] , puis dans l'approximation W.K.B. [11, 12, 13, 14] et par intégration numérique pour des champs électriques relativement intenses, mais pour lesquels les vitesses d'ionisation ne sont pas trop grandes [15, 16] . Tous ces calculs ont permis peu à peu d'avoir une idée très précise du comportement des atomes hydrogénoïdes dans un champ électrique.

Tous les calculs effectués juqu'à présent ont porté uniquement sur la détermination de l'énergie et de la vitesse d'ionisation de quelques états de l'atome d'hydrogène en présence d'un champ électrique ; de plus, seul le domaine d'énergie E négative a été étudié (E = o est la limite d'ionisation de l'atome en champ nul).

Une méthode de résolution de l'équation de Schrodinger par intégration numérique a été mise au point par E. LUC-KOENIG dans le cas de l'atome d'hydrogène ou d'atomes hydrogénoïdes pour des champs électriques d'intensité quelconque et dans des domaines d'énergie aussi bien négative que positive.

Cette méthode a permis en particulier de calculer la section efficace de photoionisation de l'état fondamental de l'atome d'hydrogène placé dans un champ électrique intense.

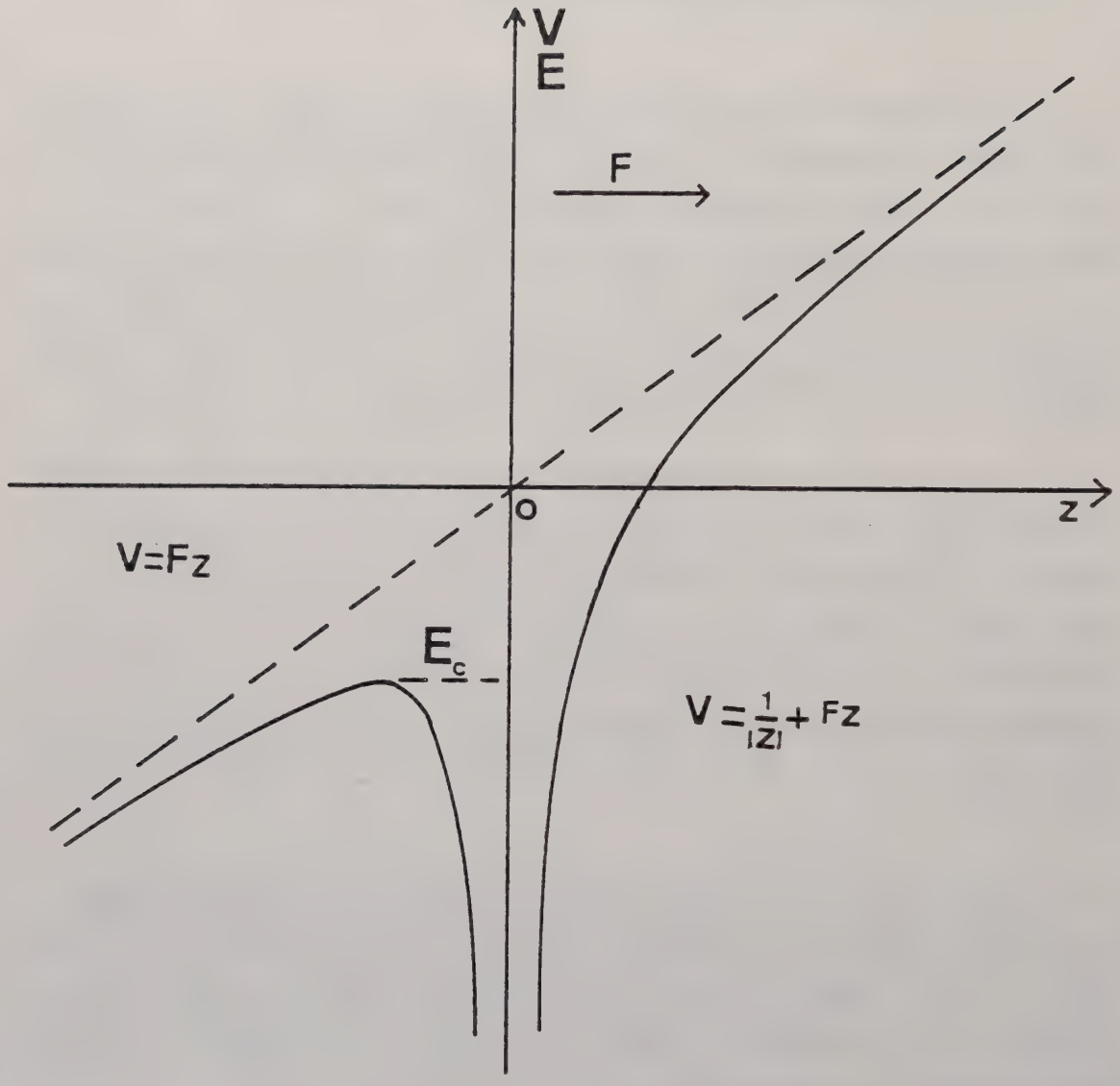


FIGURE I-1-a

Fonction potentielle suivant l'axe Oz , axe du champ électrique.

A.2.1. Etude de la surface d'énergie potentielle : seuil d'ionisation classique

Un atome d'hydrogène dans un état de Rydberg est placé dans un champ électrique extérieur $\vec{F}$ de direction parallèle à l'axe Oz. L'énergie potentielle de l'électron est la somme du terme coulombien $\frac{-1}{|z|}$ et du terme d'interaction dipolaire $+Fz$ soit

$$V(z) = -\frac{1}{|z|} + Fz \qquad \text{(en unités atomiques)}$$

L'allure de cette fonction potentielle le long de l'axe Oz est représentée sur la figure I.1 a. Elle présente pour $|z| = \frac{1}{\sqrt{F}}$ un maximum $V_{max} = E_c = -2\sqrt{F}$; elle tend vers moins l'infini pour z suffisamment petit ($z \to -\infty$).

Cette courbe montre que le spectre de l'atome d'hydrogène, placé dans un champ électrique, est un spectre continu, c'est-à-dire que l'atome n'a pas à proprement parler d'états liés. En effet, quelle que soit la valeur de l'énergie E, il existe toujours un domaine de l'espace où le mouvement de l'électron est permis dans un modèle classique parce que l'énergie cinétique $T = E - V$ y est positive.

Pour des énergies E inférieures à E_c, il existe deux régions de l'espace où le mouvement de l'électron est classiquement permis. La première est située près du noyau ($|z|$ petit), la seconde du côté de l'anode ($z < o$) , ces deux régions étant séparées par une barrière de potentiel. Dans un traitement quantique, un électron initialement localisé près du noyau a une probabilité non nulle de s'ioniser en traversant la barrière de potentiel par effet tunnel.

Les états dont l'énergie E est inférieure à E_c sont des états quasi stables. Leur durée de vie résulte à la fois de processus d'ionisation par effet tunnel et de processus radiatifs dans des proportions qui dépendent des conditions expérimentales.

A titre d'exemple, on trouve pour le niveau $n = 10$ une vitesse d'ionisation de $10^3 s^{-1}$ à $10^4 s^{-1}$ pour un champ $F = 40$ k V/cm, alors que la probabilité de désexcitation radiative est égale à $5 \times 10^5 s^{-1}$.

La probabilité d'ionisation par effet tunnel dépend de façon critique de la hauteur et de la largeur de la barrière de potentiel à franchir, donc de l'énergie E de l'état étudié par rapport à E_c, l'énergie du col de la fonction potentielle. Tant que E est notablement inférieure à E_c, l'état peut être considéré comme quasi stable. Quand E se rapproche de E_c, la vitesse d'ionisation par effet tunnel augmente très rapidement ; au voisinage de $E = E_c$, la vitesse d'ionisation passe d'une valeur négligeable à une valeur très grande. Aussi pour $E > E_c$, l'atome n'a plus d'états quasi stationnaires.

Ainsi, avec ce simple modèle à une dimension, il apparaît une notion de seuil d'ionisation que l'on peut exprimer de deux façons : Pour un champ $\vec{F}$ donné, on s'attend à ce que l'atome s'ionise s'il est dans un état d'énergie $E \geq E_c = -2\sqrt{F}$ (l'origine des énergies correspond à la limite d'ionisation de l'atome non perturbé et les unités utilisées sont les unités atomiques). Pour un atome dans un état d'énergie donnée, on s'attend à ce qu'il s'ionise si le champ $\vec{F}$ est suffisamment intense pour que E_c soit inférieure à E soit $-2\sqrt{F} = E_c \leq E$, ce qui s'écrit aussi :

$$F \geq \frac{E^2}{4} = F_c$$

Dans les expressions précédentes, E doit être, normalement, l'énergie de l'atome au moment où il s'ionise dans un champ électrique F voisin de F_c. En première approximation, on peut remplacer E par E_o l'énergie de l'atome non perturbé. Si on exprime E_o en fonction du nombre quantique principal n, le champ critique d'ionisation suit une loi très simple :

$$F_c = (2n)^{-4}$$

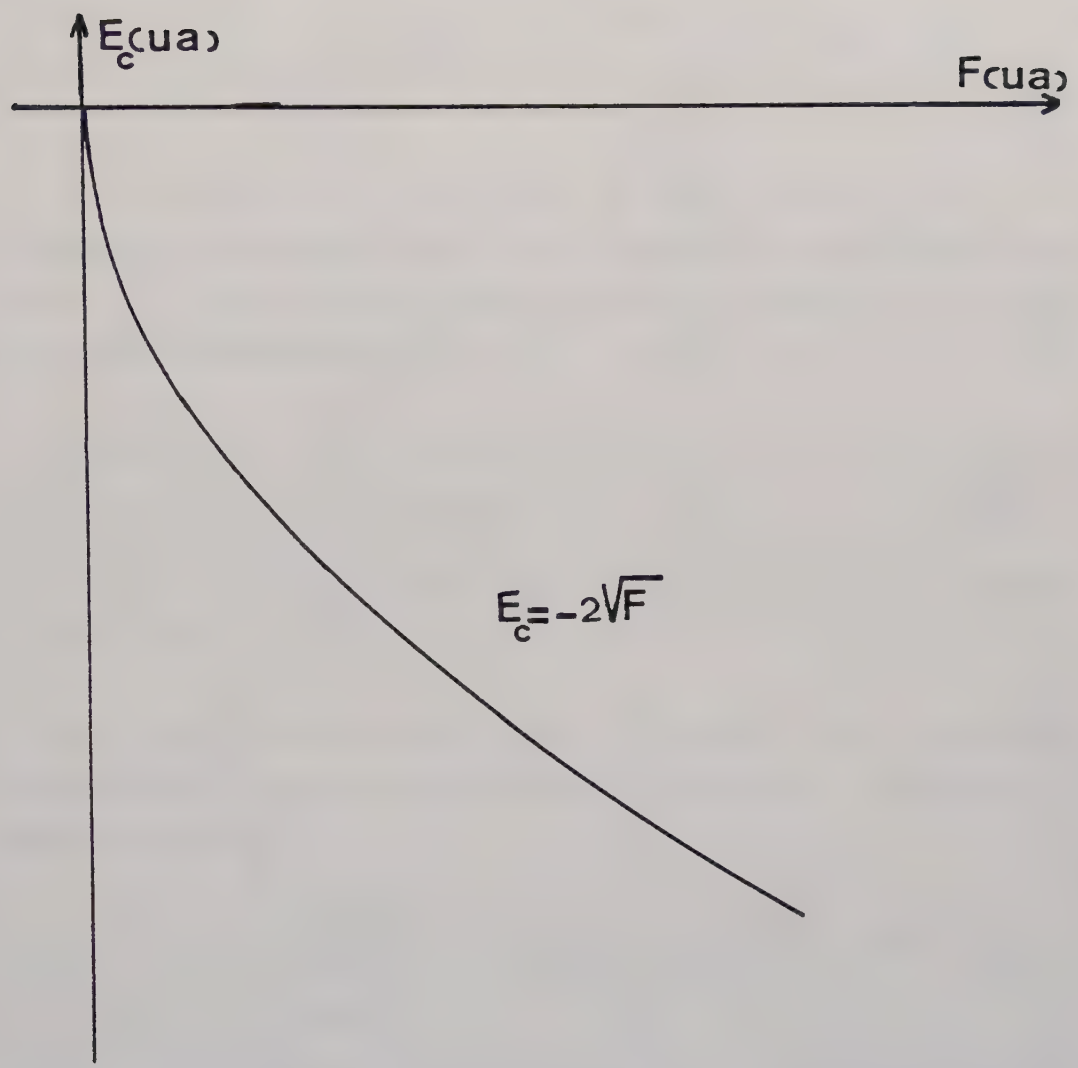


FIGURE I-1-b

Variation de l'énergie critique en fonction du champ électrique appliqué (Modèle à une dimension).

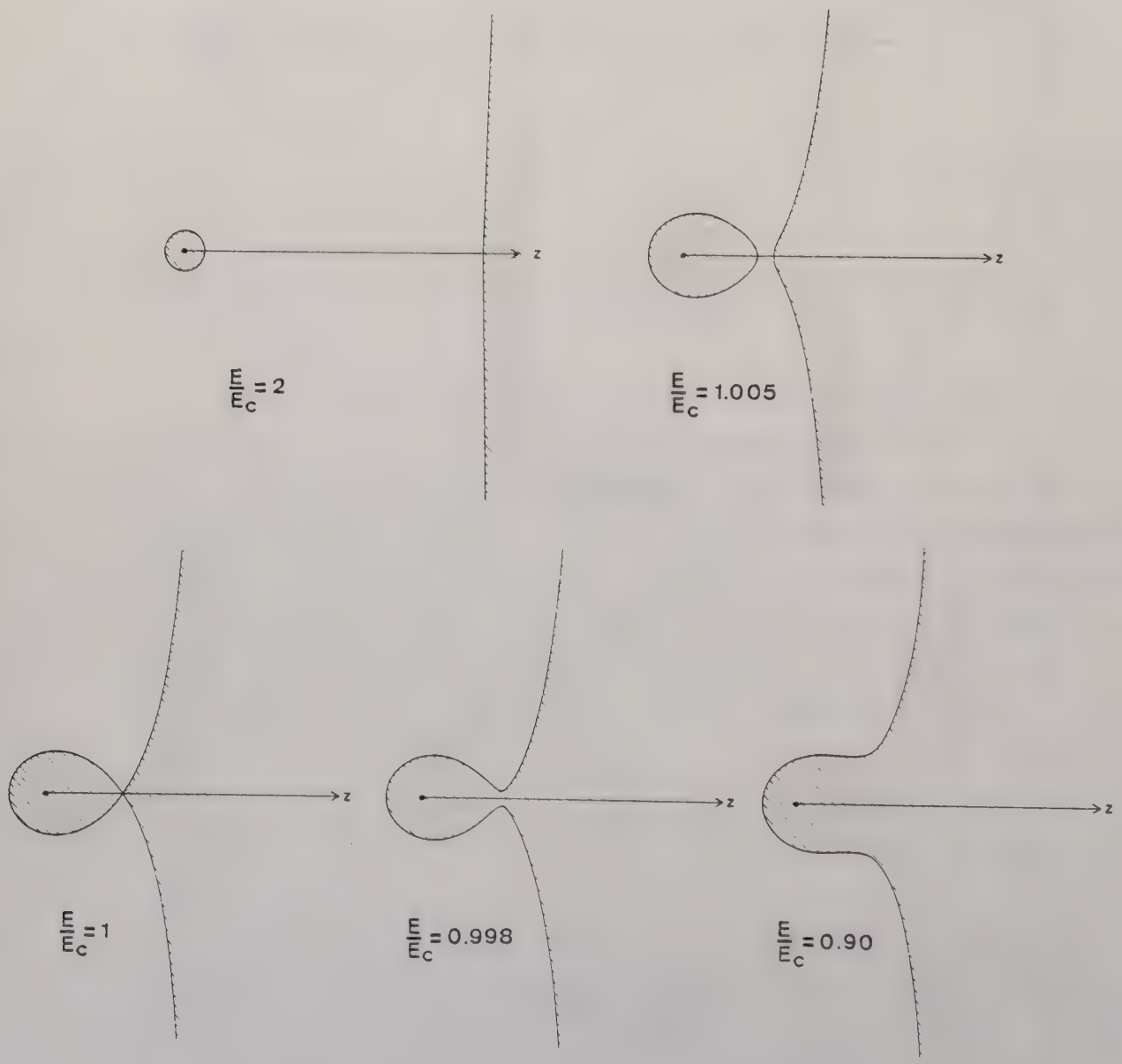


FIGURE I-2

Intersection de la surface d'énergie potentielle par des plans d'énergie donnée (les zones hachurées correspondent à des domaines où l'énergie cinétique de l'électron est positive)

La détermination du champ critique d'ionisation F_c est basée uniquement sur des considérations élémentaires de mécanique classique ; en effet, si l'on tient compte de l'effet tunnel à travers la barrière de potentiel, l'atome s'ionisera pour des valeurs du champ F_{φ} inférieures à la valeur F_c obtenue classiquement (pour la composante rouge de la raie H_γ de l'hydrogène on trouve $F_c = 1,1.10^6$ V/cm alors que l'atome s'ionise déjà pour des valeurs $F_{\varphi} = 0,69 \times 10^6$ V/cm [3]).

En conclusion, il apparaît, avec un modèle assez grossier, que la probablité d'ionisation présente, en fonction du champ électrique, un seuil F_c au-delà duquel elle est beaucoup plus forte que la probabilité d'émission spontanée.

Si on se donne une représentation graphique de l'expression de l'énergie critique E_c du col $E_c = -2\sqrt{F}$ (figure I.1 b), on trouve qu'elle divise le plan (E,F) en deux régions distinctes : celle où l'atome est pratiquement stable pour $E < E_c$ et celle où l'atome est totalement instable pour $E > E_c$.

Que devient cette condition dans le cas réel à trois dimensions ? On peut en avoir une idée en étudiant l'intersection de la surface d'énergie potentielle :

$$V(\rho,z) = Fz - \frac{1}{\sqrt{\rho^2+z^2}} \qquad (\rho^2 = x^2 + y^2)$$

par des plans perpendiculaires à l'axe $V(\rho,z)$ correspondant à différentes valeurs de l'énergie totale E (voir figure I.2) [17].

D'un point de vue classique, l'électron ne peut se trouver que dans les régions hachurées $(E < V)$ dont les contours représentent des courbes de rebroussement $(E = V)$.

Pour des énergies E inférieures ou voisines de E_c $(E = -2E_c$ ou

$E = -1{,}005\ E_c$) l'électron peut se trouver dans deux régions distinctes séparées par une zone interdite. L'atome ne pourra s'ioniser que par effet tunnel et ceci d'autant plus facilement que l'énergie E est voisine de E_c.

Ainsi donc, l'ionisation par champ ne pourra avoir lieu de façon importante que si $E \geqslant E_c$ qui apparaît de nouveau comme une condition nécessaire.

Examinons maintenant le cas où E est supérieure à E_c. Cette fois, les deux régions de l'espace accessibles à l'électron se communiquent par un passage de petites dimensions.

Si l'on décrit le mouvement de l'électron par la mécanique classique, l'ionisation de l'atome aurait été spontanée. En fait, l'ionisation de l'atome dépend de la probabilité qu'a l'électron d'être d'abord au voisinage de l'axe Oz (direction du champ électrique $\vec{F}$) et d'avoir ensuite son vecteur impulsion $\vec{p}$ pratiquement confondu avec l'axe Oz.

Le courant d'ionisation se mesure par le flux d'électrons (densité de charge multipliée par une vitesse) à travers la surface de séparation des deux régions accessibles à l'électron.

Dans le cas où E est légèrement supérieure à E_c ($E = -0.998\ E_c$) seuls les électrons situés sur l'axe Oz et ayant leurs vecteurs impulsions confondus avec l'axe Oz pourront échapper à l'attraction coulombienne du noyau.

Dans le cas où E est supérieure à E_c ($E = -0{,}90\ E_c$) les deux régions accessibles à l'électron communiquent par une grande surface et tous les électrons pourront cette fois-ci s'éloigner du noyau.

En résumé, on peut dire que la condition $E \geqslant E_c$ n'est plus dans le cas à trois dimensions une condition suffisante. La limite d'ionisation classique $E_c = -2\sqrt{F}$ perd alors son caractère de frontière entre

deux comportements totalement différents du système atomique ; toutefois, elle garde une signification physique assez simple.

On verra que cette limite d'ionisation joue un rôle très important dans le cas d'atomes non hydrogénoïdes ; en effet, dans ce cas particulier, la loi simple de variation du champ critique $F_c = (2n^*)^{-4}$ rend compte assez correctement des résultats expérimentaux obtenus sur les séries d'états de Rydberg $n\ell$ (n^* : nombre quantique principal effectif).

Toutefois, le seuil d'ionisation est beaucoup plus prononcé dans les atomes non hydrogénoïdes que dans l'atome d'hydrogène ; en effet, dans le cas de l'hydrogène la vitesse d'ionisation croît régulièrement quand le champ électrique F augmente.

En conclusion, il apparaît que l'ionisation de l'atome d'hydrogène ne pourra être comprise que moyennant la connaissance de la fonction d'onde $|n\ n_1 n_2 m_\ell\rangle$ décrivant l'état de l'électron en présence d'un champ F. Pour cela, il est alors nécessaire de résoudre l'équation de Schrodinger.

A.2.2. Atome d'hydrogène en coordonnées paraboliques

L'équation de Schrodinger pour l'atome d'hydrogène ou un atome hydrogénoïde de charge nucléaire Z placé dans un champ électrique F constant a la forme (en unités atomiques) :

$$(\frac{1}{2}\Delta + E + \frac{Z}{r} - Fz)\ \psi = o$$

Comme l'équation en champ nul, elle est séparable en coordonnées paraboliques. Si on cherche des solutions de la forme

$$\psi = \frac{1}{\sqrt{\xi\eta}}\ f(\xi)\ g(\eta)\ \frac{e^{im_\ell\phi}}{\sqrt{2\pi}}$$

alors le problème se ramène à la résolution du système I formé des deux équations différentielles :

$$(I)\quad \begin{cases} -\frac{1}{2}\frac{d^2f}{d\xi^2} + \left(\frac{m_\ell^2-1}{8\xi^2} - \frac{Z_1}{2\xi} - \frac{E}{4} + \frac{F}{8}\xi\right) f = 0 \\ -\frac{1}{2}\frac{d^2g}{d\eta^2} + \left(\frac{m_\ell^2-1}{8\eta^2} - \frac{Z_2}{2\eta} - \frac{E}{4} - \frac{F}{8}\eta\right) g = 0 \end{cases}$$

Chacune de ces équations a la forme d'une équation de Schrodinger unidimensionnelle, $\frac{E}{4}$ jouant le rôle d'énergie totale de l'électron. L'énergie cinétique est représentée par les fonctions

$$\begin{cases} T_\xi = \frac{E}{4} + \frac{Z_1}{2\xi} - \frac{m_\ell^2-1}{8\xi^2} - \frac{F}{8}\xi \\ T_\eta = \frac{E}{4} + \frac{Z_2}{2\eta} - \frac{m_\ell^2-1}{8\eta^2} + \frac{F}{8}\eta \end{cases}$$

On note que T_ξ(ou T_η) dépendent non seulement de E, mais aussi de Z_1 (ou Z_2). Ces équations sont couplées par l'intermédiaire des constantes de séparation Z_1 et Z_2 qui vérifient la relation $Z_1 + Z_2 = Z$ où Z_1 et Z_2 représentent respectivement la charge apparente vue par l'électron dans son mouvement suivant les coordonnées ξ et η.

On peut remarquer aussi que les états qui diffèrent uniquement par le signe du nombre quantique magnétique m_ℓ sont dégénérés, quelle que soit l'intensité du champ électrique F.

Les fonctions T_ξ et T_η sont représentées sur les figures I.3 et I.4 pour différentes intensités du champ électrique. Les régions accessibles à l'électron sont celles où T_ξ et T_η sont simultanément positives.

a) Champ faible : résolution par la théorie des perturbations.

Pour un champ électrique pas trop intense (nous préciserons plus loin cette condition), on peut résoudre le système d'équations (I)

en considérant séparément chacune des deux équations et en traitant le terme $\frac{F\xi}{8}$ (respectivement $-\frac{F\eta}{8}$) comme une perturbation dans l'équation du mouvement suivant la variable ξ (respectivement η). Pour des valeurs de E et m_ℓ fixées, la constante de séparation Z_1 (respectivement Z_2) joue le rôle de valeur propre dans la 1ère (respectivement la 2ème) équation et peut s'écrire sous la forme d'un développement suivant les puissances croissantes de F. A l'ordre zéro, les solutions sont identiques à celles de l'atome non perturbé et s'expriment en fonction du nombre quantique parabolique n_1 (respectivement n_2).

A l'ordre de perturbation N on peut écrire :

$$Z_1^{(N)} = \sum_{p=o}^{N} Z_1^{(p)} \quad (F, m_\ell, n_1, E) \quad F^p$$

$$Z_2^{(N)} = \sum_{p=o}^{N} Z_2^{(p)} \quad (F, m_\ell, n_2, E) \quad F^p$$

La condition $Z_1^{(N)} + Z_2^{(N)} = Z$ permet de définir E sous la forme d'une fonction implicite de F, m_ℓ, n_1 et n_2. En résolvant cette équation, on obtient l'énergie E de l'état Stark, défini par les nombres quantiques m_ℓ, n_1 et n_2, sous la forme d'un développement suivant les puissances croissantes de F :

$$E = \sum_{p=o}^{N} E^{(p)} \quad F^p \qquad [3]$$

Les premiers termes de ce développement sont les suivants (pour $Z = 1$ et $n = n_1 + n_2 + |m_\ell| + 1$)

$$E^{(0)} = -\frac{1}{2n^2}$$

$$E^{(1)} = \frac{3}{2} \; n \; (n_1 - n_2)$$

$$E^{(2)} = -\frac{n^4}{16} \left[17\, n^2 - 3\, (n_1 - n_2)^2 - 9\, m_\ell^2 + 19 \right]$$

$$E^{(3)} = \frac{3n^7}{32} \; (n_1 - n_2) \left[23\, n^2 - (n_1 - n_2)^2 + 11\, m_\ell^2 + 39 \right]$$

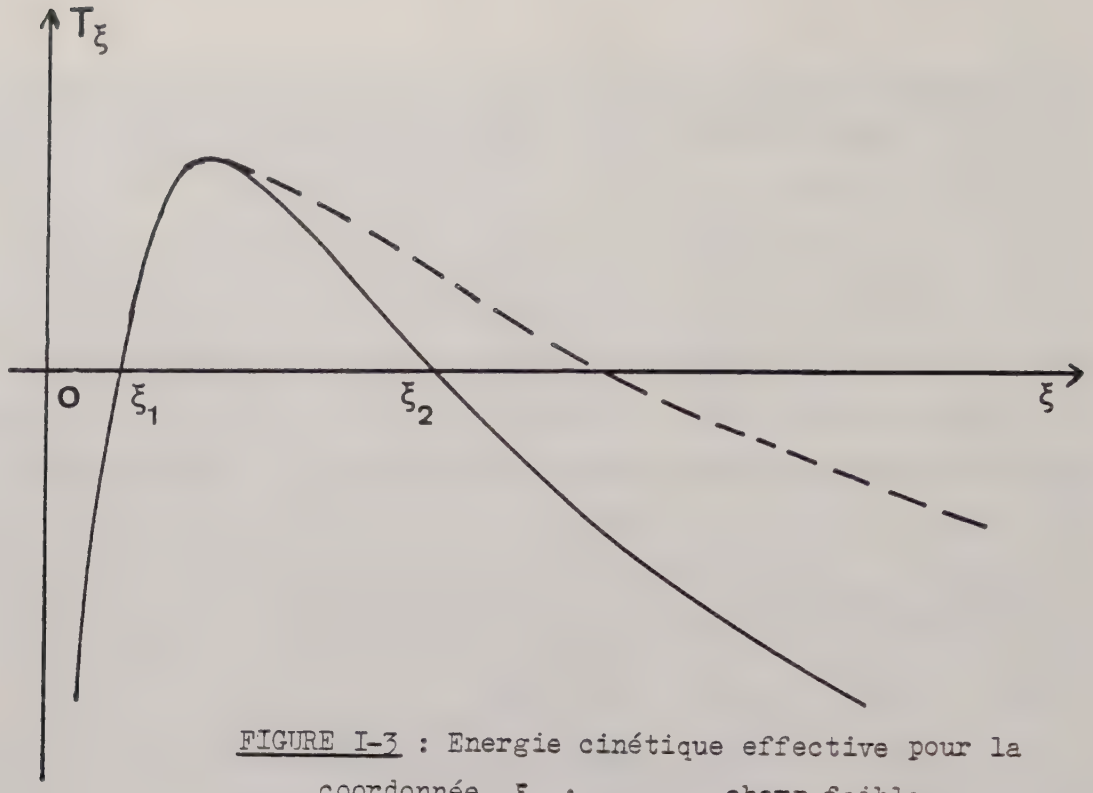


FIGURE I-3 : Energie cinétique effective pour la coordonnée ξ : ----- champ faible
——— champ intense.

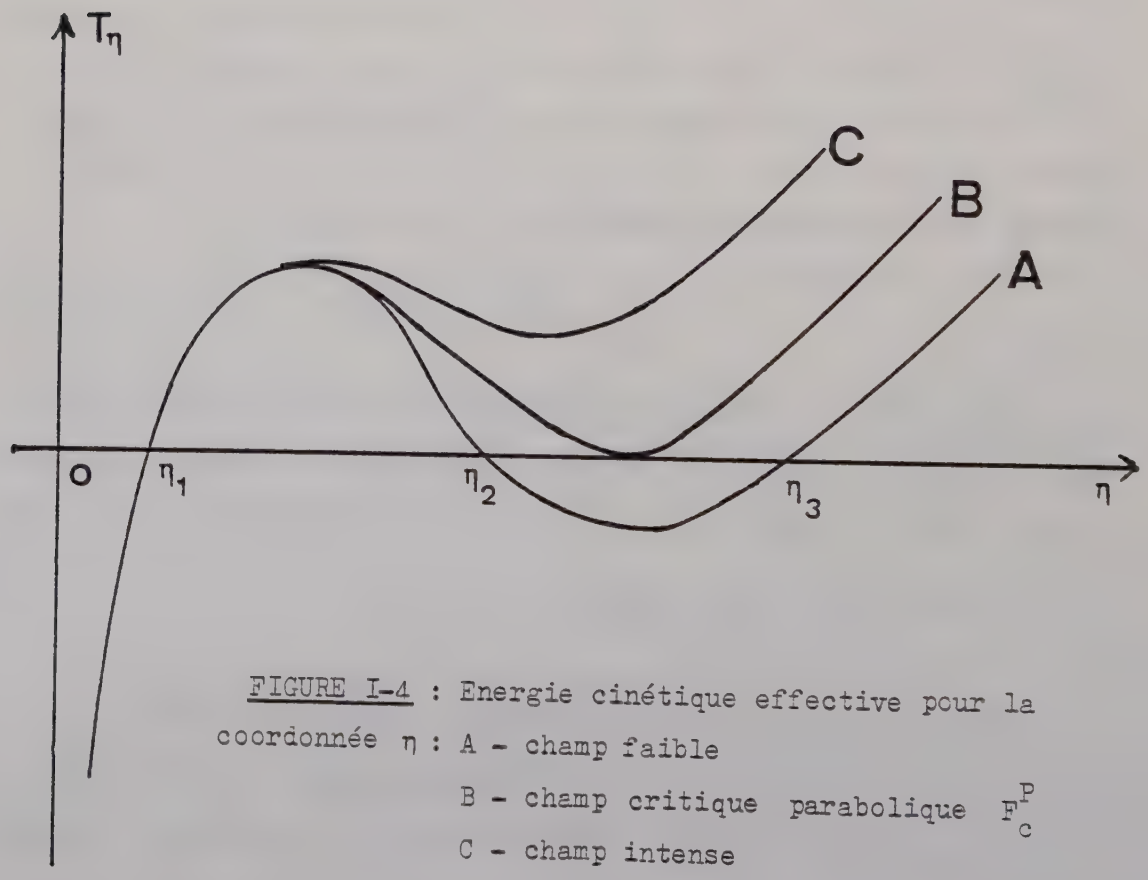


FIGURE I-4 : Energie cinétique effective pour la coordonnée η : A - champ faible
B - champ critique parabolique F_c^P
C - champ intense

En champ faible, l'effet Stark de l'hydrogène est linéaire en F. Cette propriété provient de la dégénérescence des niveaux d'énergie dans le cas d'un potentiel coulombien (l'énergie d'un état $n\,\ell\,m_\ell$ ne dépend que de la valeur du nombre quantique n).

Si on étudie la convergence de la série donnant l'énergie, on s'aperçoit que cette série présente un caractère de convergence asymptotique [18]. La variation en fonction de p de la quantité $\left|E^{(p)}\,F^p\right|$ commence par décroître pour $0 \leq p \leq P$ puis se met à croître, si bien que la série diverge. Ce caractère de convergence asymptotique est étroitement lié au fait que le spectre Stark est en réalité un spectre continu, ne possédant aucun état stationnaire discret. En revanche, ce spectre possède des états quasi discrets possédant une largeur non nulle liée aux propriétés d'ionisation par le champ électrique.

Pour des champs relativement intenses, l'utilisation de la théorie des perturbations n'est plus valable et il faut résoudre directement le système d'équations (I) en coordonnées paraboliques ; pour cela, il est nécessaire d'étudier les mouvements suivant les coordonnées ξ et η.

b) Mouvement suivant la coordonnée ξ : Nombres quantiques exacts

Suivant la coordonnée ξ le mouvement de l'électron n'est possible que dans l'intervalle $[\xi_1, \xi_2]$ où l'énergie cinétique T_ξ est positive (figure I.3). L'électron y est dans un état lié et quelle que soit la valeur de l'énergie E, il existe une solution à l'équation du mouvement suivant la variable ξ. Dans ce cas Z_1 joue le rôle de valeur propre et peut prendre un ensemble de valeurs discrètes.

La fonction d'onde $f(\xi)$, solution de l'équation différentielle en ξ, est donnée dans l'approximation WKB par :

$$f(\xi) = a\,\frac{1}{(2T_\xi)^{1/4}}\,\cos\left(\int_{\xi_1}^{\xi} \sqrt{\frac{E}{2} + \frac{Z_1}{\xi'} - \frac{m_\ell^2-1}{4\xi'^2} - \frac{F}{4}\,\xi'}\;d\xi' - \frac{\pi}{4}\right)$$

Comme la fonction d'onde $f(\xi)$ doit décroître exponentiellement en dehors de l'intervalle $[\xi_1, \xi_2]$, la règle de quantification de Bohr-Sommerfield permet d'écrire :

$$\int_{\xi_1}^{\xi_2} \sqrt{\frac{E}{2} + \frac{Z_1}{\xi} - \frac{m_\ell^2 - 1}{4\xi^2} - \frac{F}{4}\xi} \; d\xi = (n_1 + 1/2)\,\pi$$

où l'entier n_1 est égal au nombre de noeuds de la fonction d'onde $f(\xi)$ (les noeuds apparaissant pour $\xi = o$ et $\xi = oo$ ne sont pas comptés).

En effet, la phase de $f(\xi)$ croît de $-\frac{\pi}{4}$ au point $\xi = \xi_1$ à $(n_1 + 1/4)\pi$ au point $\xi = \xi_2$ de sorte que le cosinus s'annule n_1 fois dans cet intervalle.

Comme le mouvement est lié suivant la coordonnée ξ ($T_\xi \to -\infty$ quand $\xi \to +\infty$), les valeurs propres ne peuvent prendre, pour E F et m_ℓ fixés, qu'un ensemble de valeurs discrètes. On peut classer ces valeurs par ordre croissant et leur affecter de façon biunivoque un nombre entier $n_1 = 0, 1, 2 \ldots$.

Pour des valeurs de F, E, m_ℓ et n_1 données, la constante de séparation $Z_1(E, F, n_1, m_\ell)$ est une fonction décroissante de l'énergie E dont on peut essayer de trouver les formes limites.

Dans le cas où $F = o$, la courbe $Z_1(E, o, n_1, m_\ell)$ se réduit à une parabole limitée au domaine des énergies négatives :

$$Z_1^o(E, o, n_1, m_\ell) = (n_1 + \frac{1}{2} + \frac{m_\ell}{2})\sqrt{-2E} \qquad (E < o)$$

Dans le cas où $F \neq 0$, la courbe Z_1 conserve approximativement son caractère parabolique pour $E \ll o$ puis s'en écarte au fur et à mesure que l'énergie E croît ; en effet, le calcul des perturbations donne pour Z_1 une valeur telle que

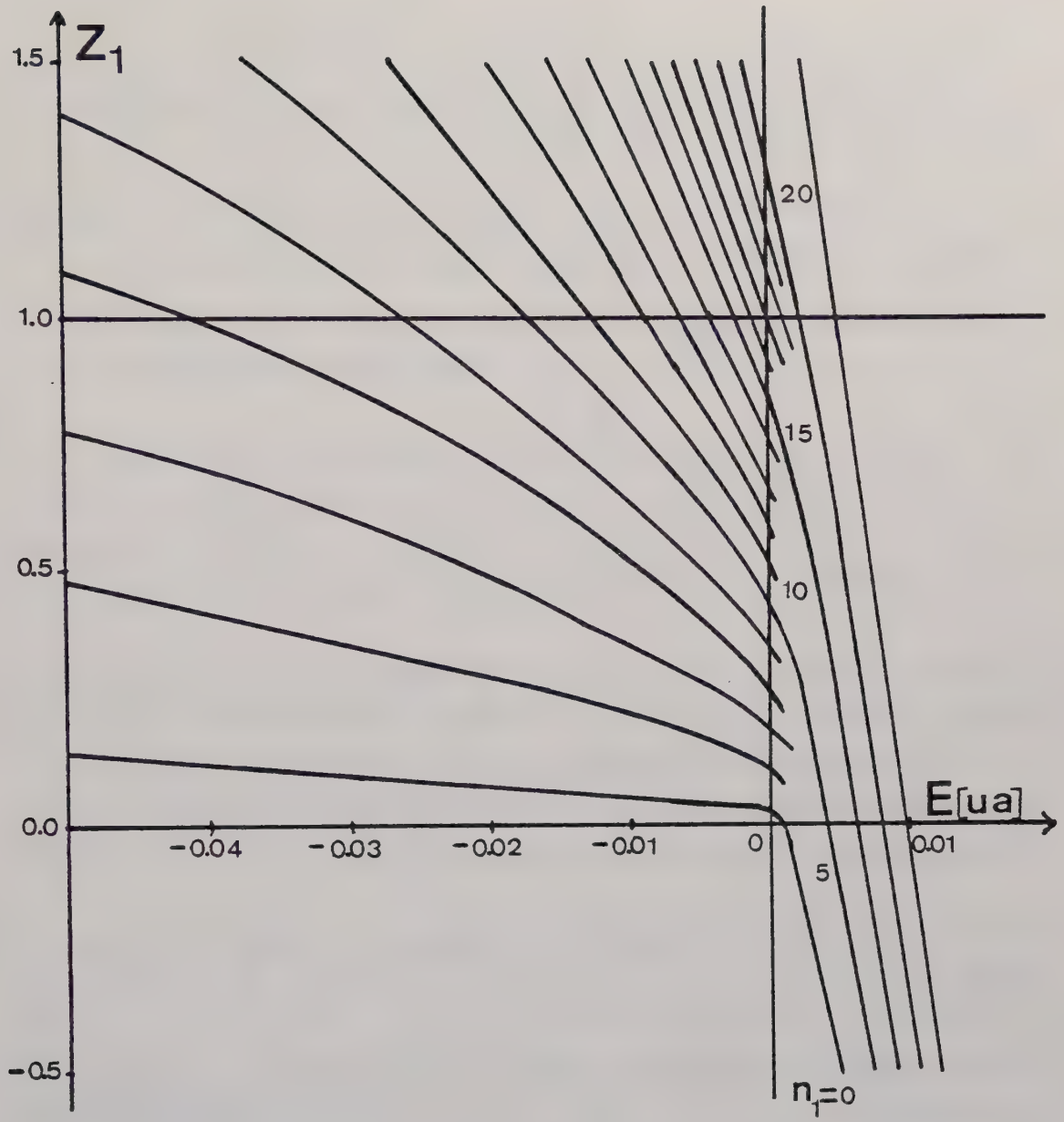


FIGURE I-5

Variation de la constante de séparation Z_1 avec l'énergie E pour différentes valeurs du nombre quantique parabolique n_1 et pour une valeur du champ électrique $F = 1,5 \times 10^{-5}$ u.a. .

$$Z_1\,(E,F,n_1,m_\ell) = Z_1^{o} - \frac{F}{8E}\,(6n_1^2 + 6n_1 m_\ell + m_\ell^2 + 6n_1 + 3m_\ell + 2)$$

Pour des énergies $E>>o$, la règle de quantification du mouvement suivant la coordonnée ξ se transforme approximativement en :

$$\int_{\xi_1 = \frac{Z_1}{2E}}^{\xi_2 = \frac{8E}{F}} \sqrt{\frac{E}{2} - \frac{F}{4}\xi}\; d\xi = (n_1 + \tfrac{1}{2})\pi$$

dont l'intégration donne la forme limite de Z_1

$$Z_1(E,F,n_1,m_\ell) \simeq -\frac{E^2}{4F} + \sqrt{E}(n_1 + \tfrac{1}{2}) \qquad (Z_1 < o)$$

La figure I.5 représente une famille de courbes Z_1 pour n_1 variant de 0 à 20, $F = 1{,}5 \times 10^{-5}$ u.a et $m_\ell = o$ [19]. Ce réseau de courbes nous permet de faire deux remarques :

. Pour une valeur donnée de l'énergie E et de m_ℓ, il y a une correspondance biunivoque entre Z_1 et n_1.

. Comme Z_1 est une fonction décroissante de l'énergie E, la condition $Z_1 = Z_2 = \frac{1}{2}$, qui traduit la symétrie de la fonction d'onde de l'état excité, peut être satisfaite pour des énergies suffisamment grandes et éventuellement positives. Cette remarque sera utilisée lors de l'étude de la section efficace de photoionisation.

L'étude du mouvement suivant la direction ξ permet de définir un nombre quantique exact n_1 qui généralise au cas $F \neq o$, le nombre quantique introduit lors de l'étude de l'atome isolé ($F = o$). Ce nombre quantique peut être associé à la valeur propre de la projection M_z sur la direction du champ électrique du vecteur de Runge-Lenz généralisé.

Pour un champ électrique F donné, tout état Stark de l'atome d'hydrogène est défini sans ambiguité par la donnée des nombres quantiques E, m_ℓ et n_1; ce dernier nombre quantique pouvant être remplacé par $Z_1 (E, F, n_1, m_\ell)$.

c) Mouvement suivant la coordonnée η : seuil d'ionisation en coordonnées paraboliques

Comme l'étude du mouvement suivant la coordonnée ξ a permis de déterminer la valeur propre $Z_1 (E, F, n_1, m_\ell)$, l'équation du mouvement suivant la coordonnée η peut être résolue, car on connaît la valeur de la constante de séparation Z_2 ($Z_2 = 1 - Z_1$).

L'électron peut se trouver dans deux régions distinctes séparées par une zone classiquement inaccessible $[\eta_2, \eta_3]$ pour laquelle l'énergie cinétique T_η est négative (figure I.4). On peut noter que l'énergie cinétique T_η dépend non seulement de F, E et $|m_\ell|$ mais aussi du nombre quantique n_1.

Si la barrière de potentiel est suffisamment importante, on peut comme précédemment utiliser la méthode W.K.B. La quantification du mouvement sur l'intervalle $[\eta_1, \eta_2]$ permet de définir un autre nombre quantique n_2, correspondant au nombre de noeuds de la fonction $g(\eta)$ sur l'intervalle $[\eta_1, \eta_2]$.

Toutefois, l'atome peut s'ioniser par effet tunnel à travers la barrière de potentiel, ce qui contribue ainsi à donner un caractère quasi stationnaire aux états de l'atome, c'est-à-dire que l'élargissement de chaque niveau d'énergie est dû principalement, si on néglige l'élargissement radiatif, à l'ionisation par effet tunnel.

Dès que le champ F augmente, la barrière de potentiel s'amincit et s'abaisse jusqu'à disparaître pour un champ $F = F_c^p(n_1, m_\ell)$ appelé champ critique parabolique (figure I.4).

Lorsque la barrière de potentiel devient trop petite, la méthode WKB cesse d'être applicable, au moins sous sa forme la plus simple. La résolution numérique du système d'équations (I) permet en revanche d'obtenir des solutions exactes du problème de l'atome d'hydrogène placé dans un champ électrique extérieur d'intensité quelconque (faible, moyenne ou intense). Un champ F est dit intense dans la mesure où l'énergie d'interaction avec l'électron est du même ordre de grandeur que l'énergie de liaison de l'électron avec le reste de l'atome.

La probabilité d'ionisation croît alors très vite avec F et le niveau d'énergie s'élargit rapidement pour se transformer ensuite en un continuum. A titre indicatif, la largeur du niveau est de l'ordre du cm^{-1} pour une probabilité d'ionisation de $10^{11}\ s^{-1}$.

A la différence du modèle à une dimension, la hauteur de la barrière de potentiel dépend non seulement de F mais également de $|m_\ell|$ et de la constante de séparation Z_2. Pour les états $|m_\ell| = 1$ par exemple, l'énergie critique parabolique E_c^p d'un niveau caractérisé par n n_1 et n_2, c'est-à-dire l'énergie pour laquelle $n_2 = n_3$ et $T_\eta = \frac{dT_\eta}{d\eta} = o$, est maintenant donnée par [3]

$$E_c^p = - 2\sqrt{Z_2 F_c^p}$$

Comme la dépendance en F_c^p de Z_2 est très compliquée, il n'est pas possible d'exprimer E_c^p comme une fonction simple de F_c^p.

Cependant, pour des états très excités d'énergies négatives, Z_2 peut prendre dans une même multiplicité n des valeurs pouvant aller de 1 (pour les niveaux $n_1 = o$) à $\frac{1}{n}$ environ pour les niveaux $n_1 = n-1$ (FENEUILLE et JACQUINOT, voir calcul au paragraphe suivant [20]). Il en résulte que, pour certains états, l'énergie E_c^p peut être beaucoup plus grande que l'énergie du col $E_c = - 2\sqrt{F}$ donnée par la loi classique. En conséquence, il existe bien au-delà de cette limite des niveaux Stark quasi stables.

Dans le cas d'un champ F très intense, l'équation du mouvement de l'électron suivant la direction η se simplifie pour devenir :

$$-\frac{1}{2}\frac{d^2g}{d\eta^2} + \left(-\frac{E}{4} - \frac{F}{8}\eta\right) g = 0$$

On retrouve alors l'équation du mouvement d'un électron libre dans un champ extérieur uniforme F . Dans ce cas, les fonctions d'ondes $g(\eta)$ peuvent s'exprimer à l'aide des fonctions d'Airy [21] .

En conclusion, cette étude simple de l'atome d'hydrogène en coordonnées paraboliques a permis d'abord de définir une énergie critique d'ionisation E_c^p qui peut être très supérieure à l'énergie d'ionisation classique ; en conséquence, il existe des niveaux pseudo-stables très au-dessus de la limite d'ionisation classique qui ne joue plus ainsi son rôle de frontière entre deux comportements possibles de l'atome. Toutefois, on verra que la limite fournie par l'énergie du col garde une signification physique même pour l'hydrogène.

Il serait intéressant, après avoir déterminé les énergies E_r des résonances Stark, de calculer leurs largeurs ainsi que les densités d'états qui leur sont associées. En effet, le calcul des forces d'oscillateurs ou des sections efficaces de photoionisation en présence d'un champ électrique ne peut être entrepris que si on connaît bien soit la densité d'états associée aux résonances Stark, soit la densité d'états du continuum.

A.2.3. Structure du spectre Stark de l'atome d'hydrogène

La résolution exacte de l'hamiltonien Stark de l'atome d'hydrogène pour un champ électrique d'intensité F donnée conduit à définir des seuils d'ionisation $E_c^p(n_1\ m_\ell)$ qui dépendent des nombres quantiques n_1 et m_ℓ : pour n_1 et m_ℓ fixés on peut trouver des états quasi discrets d'énergie E inférieure à $E_c^p(n_1\ m_\ell)$. La position de ces résonances peut être déterminée avec une bonne précision à l'aide de la théorie des perturbations.

Pour un champ F donné et pour une valeur de $|m_\ell|$ fixée, l'énergie des résonances appartenant à une multiplicité n donnée, est d'autant plus élevée que le nombre n_1 est grand.

En effet, lorsque $n_1 > n_2$ l'électron se trouve essentiellement du côté des $z > o$ (le sens du champ électrique $\vec{F}$ est pris comme sens des $z > o$) et son énergie d'interaction $\Delta E^{(1)}$ est positive (le moment dipolaire de l'atome est alors opposé au champ appliqué).

En revanche, les résonances associées cette fois à une faible valeur de n_1 d'une multiplicité donnée ont des énergies peu différentes de leurs énergies critiques d'ionisation $E_c^p\ (n_1, m_\ell)$ (l'électron se trouve essentiellement du côté des $z < o$). En conséquence, les états les plus stables d'une multiplicité sont ceux dont l'énergie de liaison est la plus faible.

Cet effet, s'il n'a pas été observé expérimentalement sur les états de Rydberg de l'hydrogène, a été vérifié sur les niveaux les plus profonds [22]. Dans le cas de la raie H_ε de l'atome d'hydrogène et pour une probabilité d'ionisation de l'ordre de $10^8\ s^{-1}$, le champ d'ionisation vaut 185 kV/cm pour le niveau $n=7$ $n_1=0$ $m_\ell = 0$ et 290 kV/cm pour le niveau $n=7$ $n_1=6$ et $m_\ell=0$.

En effet, quand l'atome est dans l'état $|n\ n_1=o\ m_\ell=o\rangle$ la probabilité de présence de l'électron du côté des $z < o$ est maximale et le modèle élémentaire à une dimension devrait permettre le calcul du champ critique d'ionisation ; en outre, le calcul montre que, dans ce cas, la constante de séparation Z_2 est voisine de l'unité et que le champ critique a la même valeur que celle donnée par le modèle classique.

En effet, dans les états $|n\ n_1=o\ m_\ell=o\rangle$ le calcul des perturbations au premier ordre donne pour la constante de séparation $Z_2\ (E, F, n_2, m_\ell)$ l'expression suivante :

$$Z_2 \simeq n\ \sqrt{-2E} + \frac{3}{4}\frac{Fn^2}{E} \quad \text{avec} \quad E \simeq -\frac{1}{2n^2} - \frac{3}{2}Fn^2$$

soit après calcul $Z_2 \simeq 1$

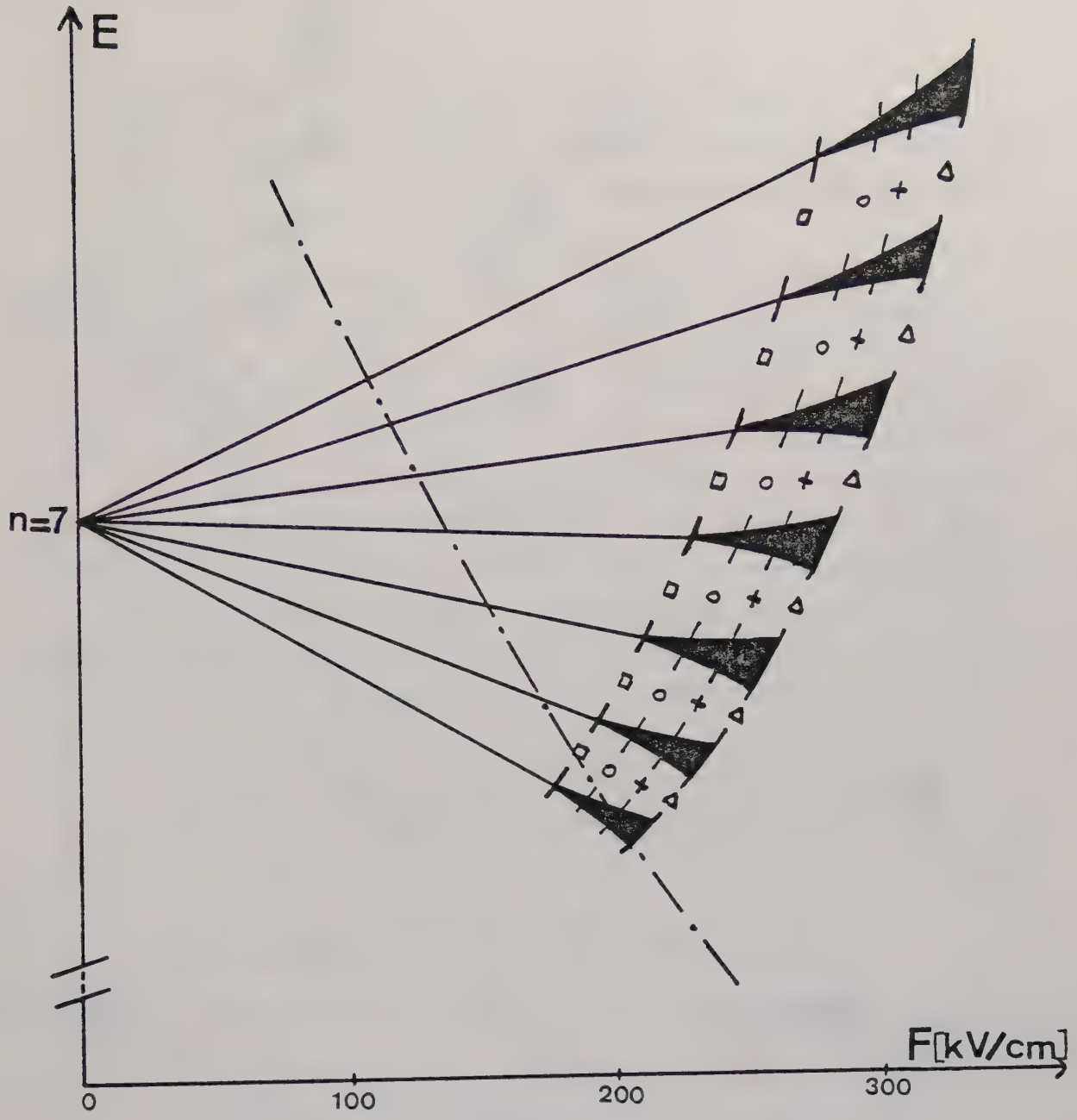


FIGURE I-6-a

Structure Stark de la multiplicité n=7 de l'atome d'hydrogène.

(les symboles (□, o, +, Δ) correspondent à des intensités du champ électrique pour lesquelles les vitesses d'ionisation sont égales respectivement à 10^7, 10^8, 10^9 et 10^{10} s^{-1}.
La courbe (------) représente la limite d'ionisation classique

$$E_c = -2\sqrt{F}$$

Ainsi, la limite d'ionisation classique $E_c = -2\sqrt{F}$ donne avec une bonne approximation le champ critique de tous les états caractérisés par les nombres quantiques n, $n_1=o$ et $m_\ell=o$.

Etant donné que le champ électrique d'ionisation F de tous les sous niveaux du terme n est tel que $16\ Fn^4 \simeq 1$, alors la correction en énergie au 2ème ordre $\Delta E^{(2)}$ n'est pas importante par rapport à la correction au 1er ordre $\Delta E^{(1)}$ tant que la vitesse d'ionisation est négligeable et, par conséquent, les niveaux d'énergie des états quasi stables peuvent être représentés approximativement par des droites. On trouve très simplement que le champ d'ionisation des composantes Stark rouges d'un niveau n, dont le nombre quantique n_1 est nul, est donné avec une bonne précision par la formule $Fn^4 = 0,12$. Il est clair que ce calcul est purement classique et qu'il ne tient pas compte du tout de l'ionisation par effet tunnel.

Quant aux composantes Stark bleues de nombres quantiques n, $n_1 = n-1$ et m_ℓ, leur constante de séparation Z_2 est donnée cette fois par :

$$Z_2 \simeq \frac{1}{2}\ \sqrt{-2E}\ + \frac{F}{2E} \quad \text{avec} \quad E \simeq -\frac{1}{2n^2} + \frac{3}{2}\,Fn^2$$

soit après calcul :

$$Z_2 \simeq \frac{1}{n}$$

Quant au champ critique d'ionisation des composantes Stark bleues, il est approximativement donné par l'expression :

$$Fn^4 \simeq 0.29 \qquad [23]$$

Cette formule simple n'est valable que si le nombre quantique principal n est assez élevé ($n > 20$). La figure I.6a représente le spectre Stark $m_\ell = o$ du niveau $n = 7$; on y a représenté, à titre indicatif, la limite classique qui donne uniquement la valeur du champ critique de la composante $n = 7\ n_1 = 0$ et on y a porté aussi les

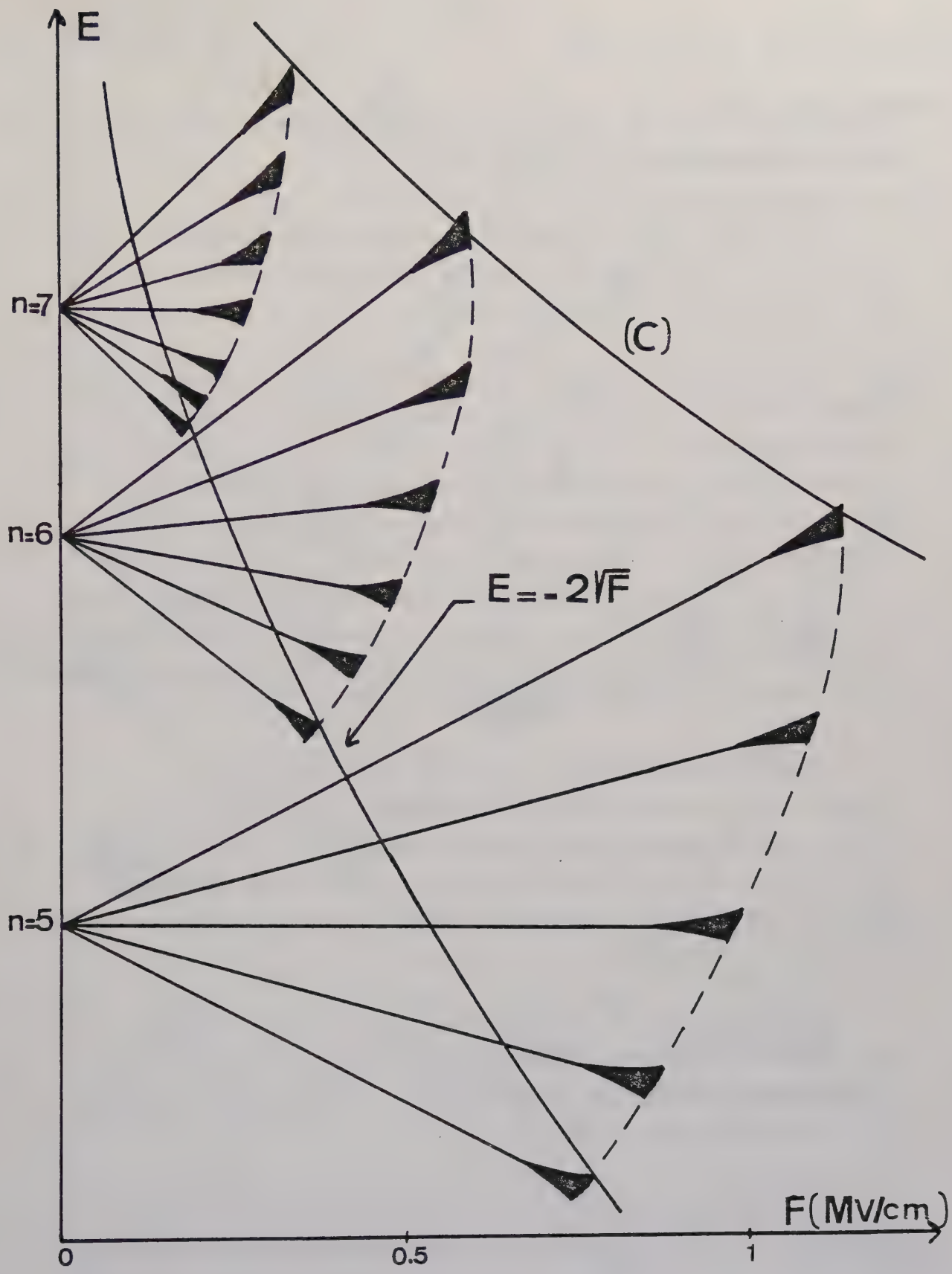


FIGURE I-6-b

Structure Stark des multiplicités n = 5, 6 et 7 de l'atome d'hydrogène.

différentes valeurs du champ électrique qui donnent le même taux d'ionisation pour tous les sous niveaux [24].

Les taux d'ionisation ont été obtenus par la méthode WKB. Cette figure montre clairement que, dans une multiplicité donnée, les états les plus profonds sont les moins stables.

Jusqu'à présent, nous nous sommes intéressés à une seule multiplicité dans laquelle tous les états sont caractérisés par les mêmes nombres quantiques n et $|m_\ell|$. Nous allons maintenant considérer simultanément des états appartenant à des multiplicités différentes. Les figures I.6 b et I.6 c présentent la variation en énergie des différents états quasi discrets $m_\ell = o$ des multiplicités $n = 5,6,7$ et $n = 9,10,11$ en fonction de l'intensité du champ électrique. Chaque niveau n'est représenté que pour une intensité du champ F telle que l'état puisse être considéré comme quasi stable (les niveaux d'énergie s'arrêtent à l'énergie critique d'ionisation).

Dans le cas où le nombre quantique principal n est faible (figure I.6 b), chaque multiplicité Stark peut être considérée comme isolée, dans la mesure où deux niveaux quasi stables, appartenant à deux multiplicités différentes, ne peuvent pas avoir la même énergie pour une intensité bien déterminée du champ F (il n'y a pas de croisement de niveaux).

Cependant, dans la région du plan où $E > -2\sqrt{F}$, il peut y avoir dégénérescence entre un niveau quasi discret $(n\ n_1\ m_\ell)$ et les continuums provenant de multiplicités de n plus élevé et associés à de faibles valeurs de n_1.

Par exemple, le niveau $n = 5\ n_1 = 4\ m_\ell = o$, qui est quasi stable pour $F < 1$ MV/cm, peut être dégénéré avec les états des continuums $n_1 = 0, 1, 2$ ou 3 issus des multiplicités $n > 6$.

Dans le cas où les valeurs de n sont assez élevées (figure I.6c), les différentes multiplicités peuvent se recouvrir : des états quasi

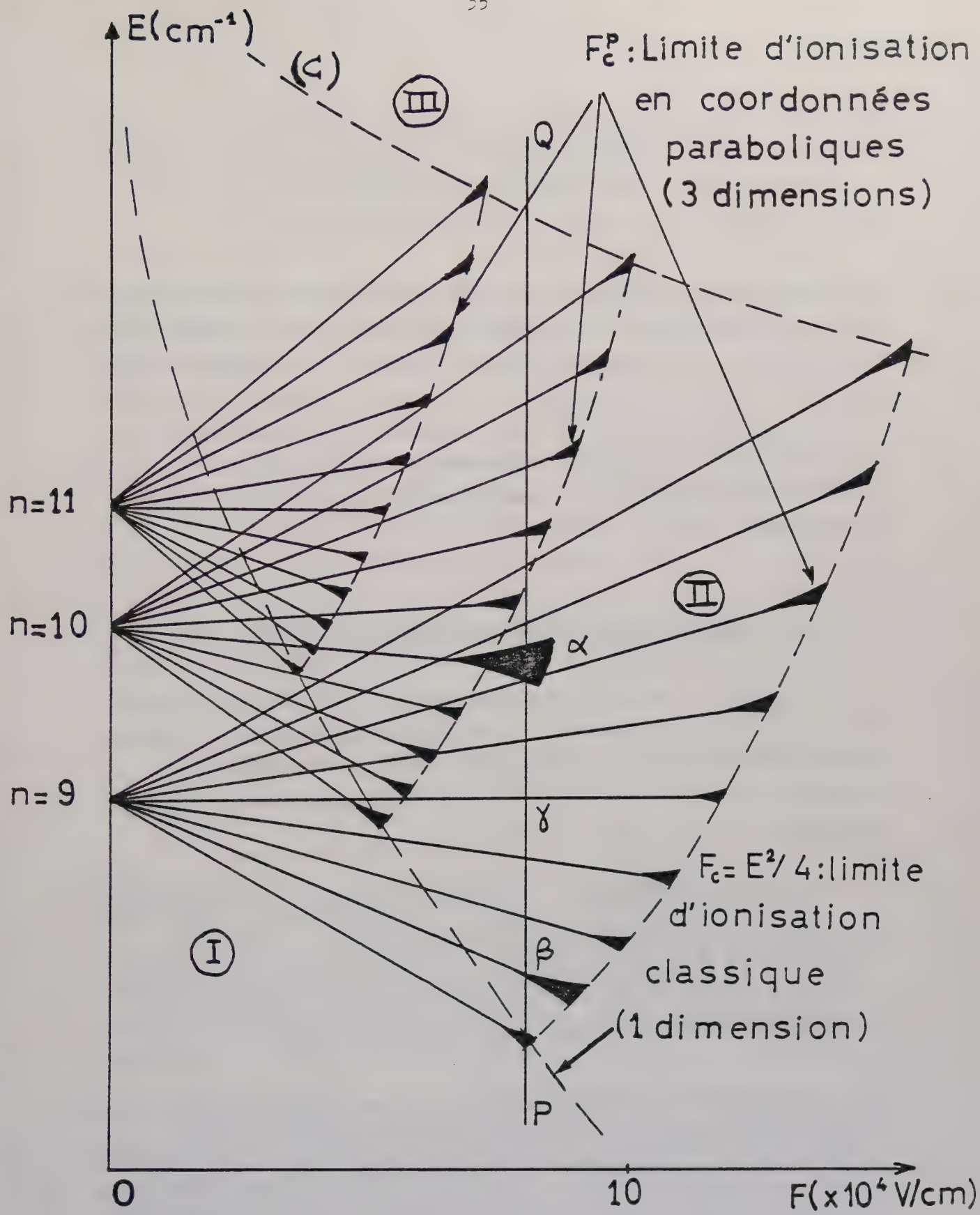


FIGURE I-6-c

Structure Stark des multiplicités n = 9, 10 et 11 de l'atome d'hydrogène. Le rôle de l'effet tunnel est indiqué par le fait que chaque niveau s'élargit pour $F < F_c^P$.

discrets $(n\ n_1\ m_\ell)$ et $(n'\ n'_1\ m_\ell)$ tels que $n > n'$ et $n_1 < n'_1$ peuvent être dégénérés pour une valeur du champ bien déterminée. Ainsi, par exemple, pour $F = 50$ kV/cm les états quasi discrets $(n = 10\ \ n_1 = 4\ \ m_\ell = o)$ et $(n = 9\ \ n_1 = 8\ \ m_\ell = o)$ ont la même énergie.

Les fonctions d'ondes de ces deux états sont des solutions exactes de l'hamiltonien Stark de l'atome d'hydrogène ; elles correspondent à la même valeur de l'énergie, mais sont associées à des valeurs différentes du nombre quantique exact n_1. Ces deux fonctions d'ondes sont donc orthogonales et les deux états correspondants n'interagissent pas : il s'agit alors d'un véritable croisement de niveaux. Aucune interaction de type discret-discret ne se manifeste donc dans le spectre Stark de l'hydrogène.

A.2.4. Symétrie dans le spectre Stark de l'hydrogène

Le caractère coulombien du champ dans lequel se déplace l'électron permet de caractériser son mouvement par une constante supplémentaire : c'est le vecteur de Runge-Lenz défini par $\vec{M} = \vec{p} \Lambda \vec{L} - \frac{\vec{r}}{r}$; c'est cette nouvelle constante qui explique la dégénérescence accidentelle spécifique du champ coulombien.

Dans le cas où l'atome d'hydrogène est soumis à un champ $\vec{F}$, on peut définir le vecteur de Runge-Lenz généralisé $\vec{M} = \vec{p} \Lambda \vec{L} - \frac{\vec{r}}{r} + \frac{1}{2} (\vec{r} \Lambda \vec{F}) \Lambda \vec{r}$ dont la projection M_z, sur la direction du champ $\vec{F}$ pris comme axe Oz, reste une constante du mouvement parce qu'elle commute avec l'hamiltonien Stark de l'atome d'hydrogène.

En présence d'un champ électrique $\vec{F}$, les seuls bons nombres quantiques sont l'énergie E, le nombre quantique magnétique orbital $|m_\ell|$ et la constante de séparation Z_1. La fonction d'onde $|E, |m_\ell|, Z_1\rangle$ est alors fonction propre de H, L_z et de l'opérateur séparation M_z [25] :

$$H \mid E, |m_\ell|, Z_1 \rangle = E \mid E, |m_\ell|, Z_1 \rangle$$
$$L_z \mid E, |m_\ell|, Z_1 \rangle = |m_\ell| \mid E, |m_\ell|, Z_1 \rangle$$
$$M_z \mid E, |m_\ell|, Z_1 \rangle = (Z - 2Z_1) \mid E, |m_\ell|, Z_1 \rangle$$

Les nombres quantiques E, m_ℓ et Z_1 (ou n_1) sont associés à un ensemble complet d'observables qui commutent ; ils permettent ainsi de caractériser les états Stark de l'atome d'hydrogène.

Dans le cas d'un croisement entre deux niveaux $|E, |m_\ell|, Z_1\rangle$ et $|E, |m_\ell|, Z_1'\rangle$, l'élément de matrice $\langle E, |m_\ell|, Z_1 | H | E, |m_\ell|, Z_1' \rangle$, qui traduit l'interaction entre ces deux niveaux, est nul (les différentes fonctions propres $|E, |m_\ell|, Z_1\rangle$ forment une base unique des trois opérateurs H, L_z et M_z et sont donc orthogonales).

Ainsi, les niveaux d'énergie caractérisés par les mêmes valeurs de $|m_\ell|$ et de E mais par des valeurs différentes de Z_1 (ou n_1) peuvent se croiser [26].

Comme conséquence de cette importante propriété de symétrie, on peut citer :

1°/ L'analyse des propriétés de l'atome d'hydrogène en présence d'un champ électrique se fait en étudiant séparément tous les états définis par les mêmes valeurs des nombres quantiques m_ℓ et n_1, mais correspondant à des valeurs différentes de l'énergie. En effet, deux états associés à des valeurs différentes de m_ℓ ou n_1 n'interagissent pas entre eux lorsqu'ils possèdent la même énergie (états dégénérés).

Dans cette approche, la notion de multiplicité (ensemble d'états dégénérés dans le spectre de l'hydrogène non perturbé et caractérisés par le même nombre quantique principal) n'a plus aucun sens. Le développement des fonctions d'ondes exactes $\psi_{n_1}^{m_\ell}(E)$ fait intervenir tous les états de l'hydrogène non perturbé caractérisés par la même valeur m_ℓ, mais aussi par des valeurs quelconques des nombres quantiques ℓ et n.

Pour chaque ensemble d'états $(n_1\ m_\ell)$ il existe, pour F fixé, une énergie critique d'ionisation $E_c^p\ (n_1\ m_\ell)$ qui, pour $n_1 = 0$ et m_ℓ faible, diffère peu de la valeur classique $-2\sqrt{F}$.

Ainsi, on peut remarquer que la limite fournie par l'énergie du col garde une signification physique même pour l'hydrogène ; en effet, en-dessous de cette limite n'existent que des niveaux pseudo-stables, alors qu'au dessus apparaissent, outre ces niveaux pseudo-stables, des continuums d'ionisation issus de niveaux supérieurs.

Sur la figure I.6c on voit que le diagramme (E,F) se partage en trois types de régions.

Dans la région I, il n'y a que des structures Stark quasi stables dont la largeur spectrale est inférieure à $0,1\ cm^{-1}$. En général, l'étude de cette région se fait à champ F constant, les niveaux Stark excités étant peuplés à partir d'un niveau profond à l'aide d'un laser à longueur d'onde variable. La détection des niveaux quasi stables utilise la technique d'ionisation par champ et conduit à superposer au champ constant une impulsion de champ électrique d'intensité variable : on fait ainsi de la pure spectroscopie de position des niveaux Stark.

Dans la région II, située entre la limite classique et la courbe (C) qui joint les champs d'ionisation des composantes Stark bleues des différentes multiplicités, on trouve simultanément des structures pseudo stables et des continuums d'ionisation issus de niveaux supérieurs ; compte tenu des croisements de niveaux permis par les propriétés de symétrie, il n'existe aucune sorte d'interaction entre ces niveaux quasi discrets et les continuums dans lesquels ils baignent. L'étude spectroscopique de cette région se fait de la même manière que celle de la région I et conduit à détecter les niveaux quasi stables.
En revanche, si on supprime l'impulsion de champ électrique, on détecte alors uniquement les ions formés, ce qui permet d'étudier les propriétés d'ionisation des états instables : il s'agit alors d'une étude de photoionisation en présence d'un champ électrique.

Dans la région III, située au-delà de la courbe (C), il n'y a plus que des continuums d'ionisation et on peut étudier les densités de forces d'oscillateurs dans les spectres de photoionisation en présence d'un champ électrique.

Ainsi, la zone II apparaît comme une zone de transition entre le cas où l'atome est totalement stable (vitesse d'ionisation $\Gamma_I < 10^5\ s^{-1}$) et le cas où l'atome est totalement instable ($\Gamma_I > 10^{10}\ s^{-1}$) ; aussi son étude doit présenter un très grand intérêt.

Si on effectue, à champ F constant, un balayage en énergie dans la région II (droite PQ de la figure I.6c) on peut trouver trois situations différentes :

α) Le niveau Stark est extrêmement large car le champ F est du même ordre de grandeur que le champ critique parabolique F_c^p de ce niveau ; aussi, observe-t-on une résonance peu intense et très large ($\Delta\nu > 1\ cm^{-1}$, résonance du type α).

β) La vitesse d'ionisation du niveau n'est plus négligeable ($\Gamma_I = 10^6$ à $10^7\ s^{-1}$) parce que, pour cette valeur du champ F, la contribution de l'effet tunnel ne peut plus être négligée ; aussi, doit-on observer une résonance de type lorentzien, intense et fine ($\Delta\nu \simeq 0.02\ cm^{-1}$, résonance du type β).

γ) La vitesse d'ionisation du niveau est entièrement négligeable ($\Gamma_I < 10^5\ s^{-1}$) à tel point que le niveau peut être considéré comme stable (résonance du type γ).

Il est à remarquer que ces trois types de résonances présentent le même profil lorentzien tant que le champ n'est pas trop intense, mais possèdent des largeurs différentes dont on aura une idée en comparant le champ appliqué F au champ critique parabolique F_c^p du niveau.

Toutefois, dans le cas d'atomes non hydrogénoïdes, comme on le verra plus tard, seules les résonances du type α et β conserveront le même profil ; quant aux résonances du type γ leur forme sera totalement modifiée.

2°/ Les états caractérisés par des nombres quantiques n_1 différents peuvent être étudiés séparément, car aucun effet d'interférence ne se manifeste aussi bien dans le calcul de la densité d'états que dans le calcul de la section efficace de photoionisation.

3°/ Enfin, on doit s'attendre à ce que le processus d'ionisation de l'atome d'hydrogène soit différent du processus d'ionisation des autres atomes, car la propriété de symétrie est spécifique au potentiel coulombien. En effet, pour les spectres d'atomes non hydrogénoïdes, seul m_ℓ reste un bon nombre quantique et tous les états de même nombre quantique m_ℓ interagissent entre eux (anticroisement de niveaux).

En fait, le point 3°/ est le plus important : en effet, l'interaction entre les différentes multiplicités permet de comprendre le passage du modèle d'ionisation de l'hydrogène au modèle d'ionisation des autres atomes (modèle classique).

Quant au point 1°/ il permet d'expliquer les formes et les largeurs des différentes résonances Stark principalement dans le cas d'atomes non hydrogénoïdes.

A.2.5. Densité d'états

Le spectre de l'atome d'hydrogène placé dans un champ électrique est un spectre continu : pour F et m_ℓ fixés et pour un nombre de noeuds déterminé n_1 de la fonction d'onde $f(\xi)$, il est possible de trouver, quelle que soit la valeur de l'énergie E, une solution unique à l'équation de Schrodinger.

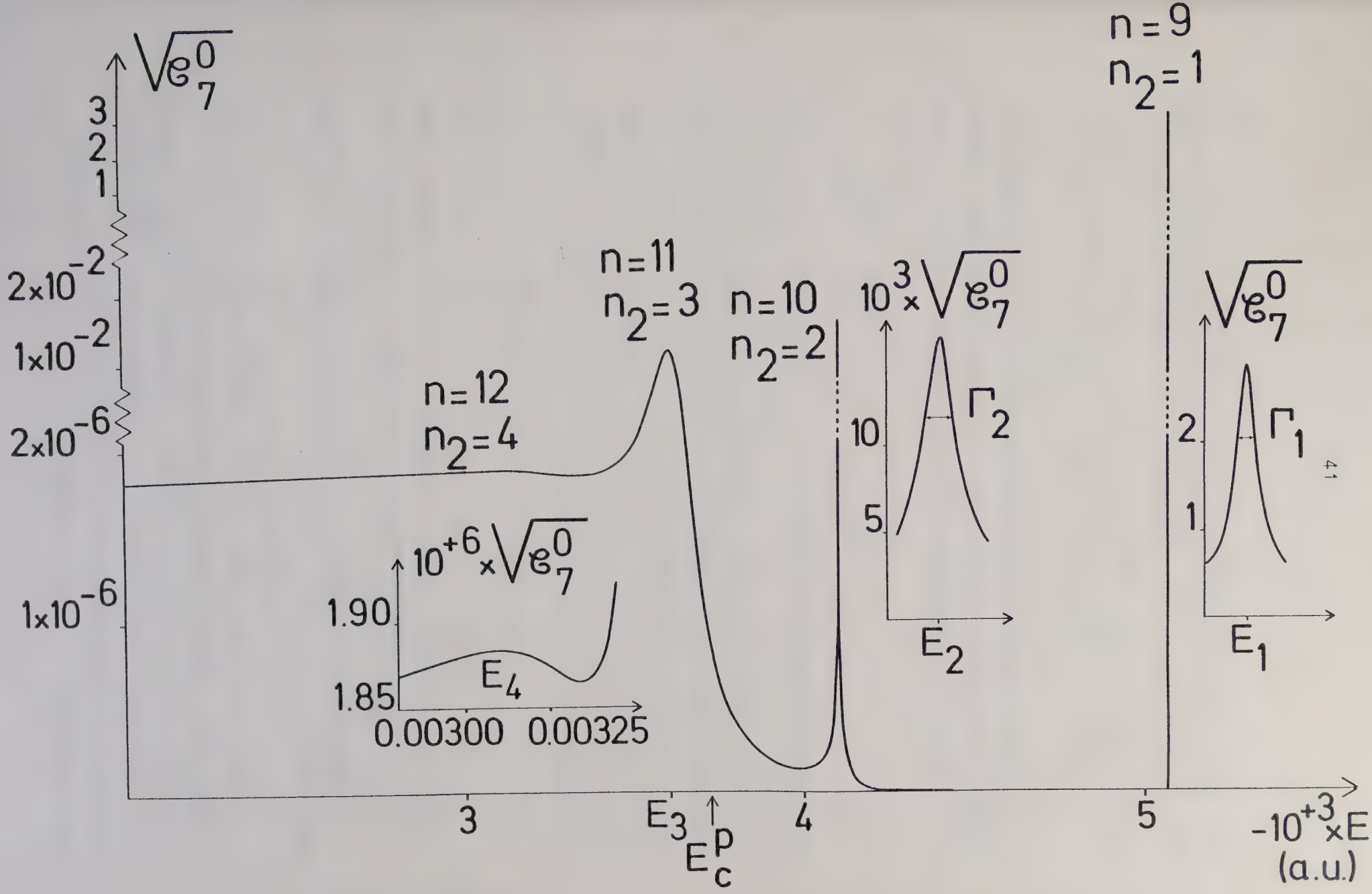


Figure I-7 : Répartition en énergie de la densité des états $n_1=7$ ($F = 1{,}5\times10^{-5}$ u.a.)

Cette solution $\psi_{n_1}^{m_\ell}$ est définie à un facteur multiplicatif près qui peut être déterminé en imposant la condition de normalisation :

$$\langle \psi_{n_1}^{m_\ell}(E) \,|\, \psi_{n_1'}^{m_\ell'}(E) \rangle = \delta_{n_1 n_1'} \cdot \delta_{m_\ell m_\ell'} \cdot \delta(E-E')$$

La normalisation de la fonction d'onde $\psi_{n_1}^{m_\ell}(E)$ s'obtient en écrivant que, loin du noyau, le flux I du vecteur densité de courant de probabilité $\vec{j}$ associée à $\psi_{n_1}^{m_\ell}(E)$ est égal à [21] :

$$I = \iint_S \vec{j}\ \vec{ds} = \frac{1}{2\pi}$$, valeur qui ne dépend pas de l'énergie.

Les fonctions du spectre continu normées, suivant une fonction de Dirac de l'énergie, possèdent donc la même amplitude infiniment loin dans la direction du mouvement non lié $(\eta \to \infty)$ et ceci, quelle que soit la valeur de l'énergie. En revanche, l'amplitude de la fonction d'onde près du noyau dépend de l'état considéré, c'est-à-dire des valeurs des nombres quantiques E, m_ℓ et n_1. On peut écrire :

$$\psi_{n_1}^{m_\ell}(E) \simeq (\xi\eta)^{|m_\ell|/2} \sqrt{C_{n_1}^{|m_\ell|}(E)}\ \frac{e^{im_\ell\phi}}{\sqrt{2\pi}}$$

où $C_{n_1}^{m_\ell}(E)$ représente la densité partielle d'états de nombres quantiques n_1 et m_ℓ qui ne dépend que des nombres n_1, E et $|m_\ell|$ [15].

Du fait de la dégénérescence du spectre en $|m_\ell|$, seul $C_{n_1}^{|m_\ell|}(E)$ sera étudié.

Pour F, m_ℓ et n_1 fixés $C_{n_1}^{|m_\ell|}(E)$ est une fonction continue de l'énergie dont l'allure typique est présentée sur la figure I.7. Cependant, pour des énergies inférieures à l'énergie critique d'ionisation $E_c^p(n_1, m_\ell)$ des états $n_1\, m_\ell$, la variation de $C_{n_1}^{|m_\ell|}(E)$ en fonction de E présente une structure de résonances tout au moins pour des valeurs de n_2 pas trop élevées :

$C_{n_1}^{|m_\ell|}(E)$ a une valeur négligeable sauf au voisinage de certaines énergies E_r dites énergies de résonances où $C_{n_1}^{|m_\ell|}(E)$ présente un profil lorentzien de largeur Γ. Pour n_1 et $|m_\ell|$ fixés, les différentes résonances peuvent être caractérisées par le nombre n_2 dont la valeur varie d'une unité lorsque l'on passe d'une résonance à la suivante. Pour des énergies supérieures à $E_c^p(n_1, |m_\ell|)$, $C_{n_1}^{|m_\ell|}(E)$ a une valeur non négligeable et varie très lentement avec l'énergie : la densité d'état a ainsi une structure de spectre continu. Finalement, $C_{n_1}^{|m_\ell|}(E)$ devient négligeable pour des valeurs très élevées de l'énergie telle que $E > E_d(n_1\ m_\ell) > o$.

Pour F et m_ℓ fixés, l'énergie critique $E_c^p(n_1\ m_\ell)$ croît avec n_1 et devient, pour n_1 suffisamment grand, supérieure à l'énergie d'ionisation en champ nul $E = o$. Dans ce cas, la structure de résonances quasi discrètes disparaît et il ne subsiste plus qu'un continuum large et presque plat s'étendant de E_c^p à E_d. [16]

$C_{n_1}^{|m_\ell|}(E)$ On peut attribuer une signification physique à cette constante en étudiant l'évolution de la fonction d'onde $\psi(t=o)$ de l'électron situé en $\xi = \eta = o$ à l'instant $t = o$.

A $t = o$ la fonction d'onde est :

$$\psi(t = o) = \frac{e^{im_\ell^o \phi}}{\sqrt{2\pi}}\ \delta(\xi)\ \delta(\eta)\ .\ \frac{1}{(\xi\eta)^{|m_\ell^o|/2}}$$

A un instant ultérieur t la fonction d'onde $\psi(t)$ s'écrit comme une superposition des différentes fonctions propres $\psi_{n_1}^{m_\ell}(E)$:

$$\psi(t) = \sum_{n_1 m_\ell} \int dE\ a_{n_1}^{m_\ell}(E)\ \psi_{n_1}^{m_\ell}(E)\ e^{-iEt} \qquad \text{où}$$

$$\left| a_{n_1}^{m_\ell}(E) \right|^2 = \left| \langle \psi(t=o) \mid \psi_{n_1}^{m_\ell}(E) \rangle \right|^2 = C_{n_1}^{m_\ell}(E)\ .\ \delta(m_\ell, m_\ell^o)$$

Ainsi $C_{n_1}^{|m_\ell|}(E)$ apparaît comme étant égal à la densité partielle des états caractérisés par les nombres quantiques n_1 dans le développement de la fonction d'onde décrivant un électron initialement localisé près du noyau.

Si on se fixe le champ F et les nombres n_1 et m_ℓ, alors la densité partielle des états $C_{n_1}^{|m_\ell|}(E)$ est uniquement fonction de l'énergie E ; cette fonction ne varie pas de façon monotone avec E mais présente plutôt une structure de résonances de forme lorentzienne. Au voisinage d'une énergie de résonance E_r, $C(E)$ s'écrit comme :

$$C(E) = C(E_r) \frac{\frac{1}{4}\Gamma^2}{(E-E_r)^2 + \frac{1}{4}\Gamma^2}$$

où Γ représente la largeur de l'état quasi stationnaire défini par les nombres quantiques E_r, n_1 et $|m_\ell|$. En fait $C(E)$ dépend aussi de n_2 par l'intermédiaire de E_r et de Γ .

De plus, pour des énergies E voisines de E_r, la dépendance en énergie de la fonction d'onde $\psi_{n_1}^{m_\ell}(E)$ près du noyau est donnée uniquement par la variation de son amplitude , soit ($E \simeq E_r$ et $|\vec{r}|$ petit) :

$$\psi_{n_1}^{m_\ell}(E,\vec{r}) = \sqrt{C_{n_1}^{|m_\ell|}(E) \,/\, C_{n_1}^{|m_\ell|}(E_r)} \cdot \psi_{n_1}^{m_\ell}(E_r, \vec{r})$$

Si à l'instant $t = o$, le système est décrit, pour $|\vec{r}|$ petit, par la fonction d'onde $\psi_{n_1}^{m_\ell}(E_r)$, l'évolution au cours du temps de la fonction d'onde $\psi(t)$ peut s'écrire sous la forme :

$$\psi(t) = \psi(o) \int C_{n_1}^{|m_\ell|}(E)\, e^{-iEt}\, dE \;\alpha\; \psi(o)\, e^{-iE_r t}\, e^{-\frac{1}{2}\Gamma t}$$

La probabilité de trouver l'électron près du noyau décroît exponentiellement au cours du temps avec la constante $\tau = 1/\Gamma$ et la largeur de la résonance E_r est liée à la durée de vie à l'ionisation de l'état Stark.

En fait, on peut interpréter la densité partielle des états $C_{n_1}^{|m_\ell|}(E)$ comme une probabilité de présence de l'électron près du noyau ($\xi = \eta = o$) :

$$C_{n_1}^{|m_\ell|}(E) = \lim_{\substack{\xi \to o \\ \eta \to o}} \frac{\left|\psi_{n_1}^{m_\ell}(E)\right|^2}{\left|\xi\eta\right|^{|m_\ell|}}$$

Il apparaît ainsi que $C_{n_1}^{|m_\ell|}(E)$ ne pourra prendre de valeurs significatives que si l'électron se trouve au voisinage du noyau, c'est-à-dire si les énergies cinétiques effectives T_ξ et T_η sont simultanément positives pour de faibles valeurs de ξ et η .

L'étude des expressions de T_ξ et T_η montre que, à l'exception de résonances étroites et intenses qu'on observe pour des énergies $E \leq E_c^p(n_1, |m_\ell|)$, la densité partielle des états $C_{n_1}^{|m_\ell|}(E)$ prend aussi des valeurs non négligeables dans le domaine d'énergie $E_c^p(n_1, m_\ell) < E < o$.

Les calculs montrent aussi que la densité partielle des états n_1 et m_ℓ devient négligeable pour des énergies E supérieures à $E_d(n_1, m_\ell)$ dont la valeur, approximativement indépendante de $|m_\ell|$, est donnée par [16]:

$$E_d(n_1) = 0{,}164\ n_1^{2/3}\ F^{2/3} \qquad (E_d^{n_1} \text{ en } cm^{-1} \text{ et } F \text{ en } V.cm^{-1}).$$

A.2.6. Oscillations dans la densité totale d'états $C^{|m_\ell|}(E)$

Pour des valeurs fixées de m_ℓ et de l'énergie E, la densité totale d'états $C^{|m_\ell|}(E)$ s'obtient en additionnant toutes les contributions partielles $C_{n_1}^{|m_\ell|}(E)$ relatives aux différentes valeurs du nombre quantique parabolique n_1

$$C^{|m_\ell|}(E) = \sum_{n_1=o}^{\infty} C_{n_1}^{|m_\ell|}(E)$$

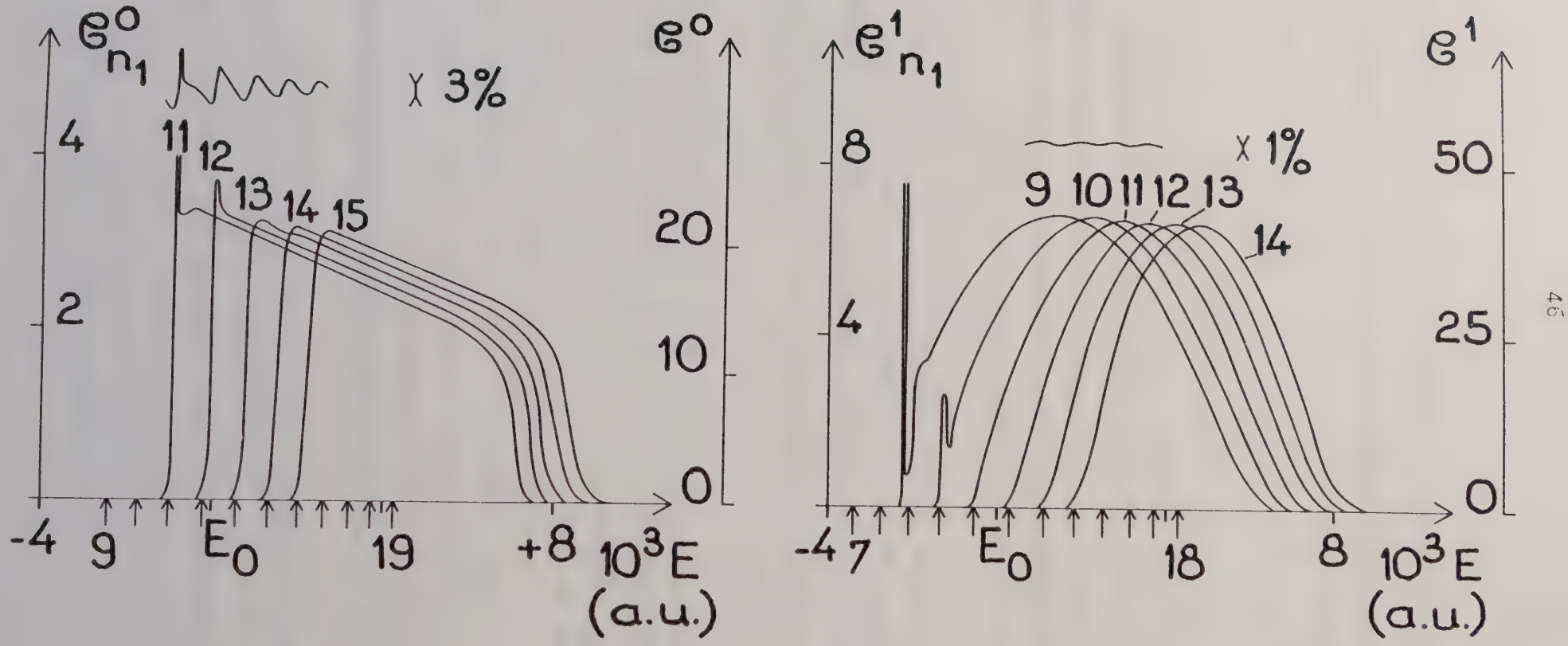


FIGURE I-8 : Répartition en énergie de la densité totale d'états
F = 1,5 x 10^{-5} u.a. : m_ℓ=0 (gauche) et $|m_\ell|$=1 (droite).

C'est grâce aux propriétés de symétrie du système que l'effet d'interférence n'apparaît pas dans la densité totale $C^{|m_\ell|}(E)$.

On a reporté sur la figure I.8 les densités partielles $C_{n_1}^{|m_\ell|}(E)$ et les densités totales $C^{|m_\ell|}(E)$ dans les cas où $|m_\ell| = 0$ ou 1.

Outre quelques fines résonances dans le domaine sous critique $E < E_c^p(n_1, m_\ell)$ (figure I.7), on remarque que $C_{n_1}^{|m_\ell|}(E)$ est constituée principalement par une large "résonance" qui s'étend de $E_c^p(n_1, m_\ell)$ à $E_d(n_1)$ ($E_d(n_1 = o) - E_c^p(n_1 = o) \sim 1600$ cm^{-1} pour un champ $F = 77$ kV.cm^{-1}).

On peut noter aussi que les densités totales $C^1(E)$ et $C^o(E)$ ont des structures légèrement oscillantes mais qu'elles ne présentent entre elles aucune différence significative ; de plus, leurs taux de modulation sont très faibles même pour des champs électriques élevés. Ainsi, pour un champ $F = 77$ kV.cm^{-1} on trouve un taux de modulation de 3 % pour $m_\ell = o$ et 1 % pour $|m_\ell| = 1$ [16].

En conclusion, on peut dire que les densités totales d'états $C^{|m_\ell|}(E)$ ne présentent aucune structure, à l'exception de quelques résonances localisées près de l'énergie critique E_c^p. En fait, on observe expérimentalement la section efficace de photoionisation et non la densité d'états. En conséquence, il est nécessaire de faire un calcul de densité de forces d'oscillateurs, afin d'interpréter le spectre de photoionisation de l'atome d'hydrogène en présence d'un champ électrique ; il est à remarquer que ce calcul n'a été rendu possible que grâce à la connaissance des fonctions d'ondes exactes normées en énergie.

A.2.7. Densité de forces d'oscillateurs dans le spectre de photoionisation

Comme le spectre Stark de l'atome d'hydrogène est continu, on ne peut étudier en principe que les transitions entre états non liés. Toutefois, si on s'intéresse à des transitions entre des niveaux peu excités (en particulier le niveau fondamental 1s) et des niveaux fortement excités et ceci dans le cas où le champ électrique appliqué est du même ordre de grandeur que le champ critique $F_c(n)$ des états de nombre quantique principal n, il est tout à fait possible de négliger l'influence du champ électrique sur la fonction d'onde ψ_i du niveau initial peu excité.

Ainsi, en utilisant la formule de Yamabe [27] relative aux largeurs Stark Γ_{n, n_1, m_ℓ} des niveaux, on obtient pour un champ $F = F_c\ (n = 3)$ une largeur $\Gamma_{2,0,1} = 0{,}1$ MHz ; une telle largeur de niveau est complètement négligeable si bien que la fonction d'onde de l'état ψ_i diffère très peu de la fonction d'onde en champ nul. En conséquence, l'état ψ_i peut être considéré avec une bonne approximation comme un état lié.

Dans le cas d'une transition dipolaire électrique reliant un état discret ψ_i d'énergie E_i et un état du continuum $|\psi_f> = |E, n_1, |m_\ell|>$ d'énergie E_f, la densité spectrale de forces d'oscillateurs s'écrit en unités atomiques :

$$\frac{df}{dE}(n_1, |m_\ell|, E) = \frac{2}{3}(E_f - E_i)\ |<\psi_i\ |\ \vec{r}\ |\ \psi_f>|^2 \qquad [28]$$

Cette densité partielle de forces d'oscillateurs se déduit facilement de la section efficace partielle de photoionisation $\sigma_F(n, E, |m_\ell|)$:

$$\frac{df}{dE}(n_1, E, |m_\ell|) = \frac{137}{6\pi^2}\ \sigma_F(n_1, E, |m_\ell|)$$

Dans le cas où la valeur de F est fixée et si on s'intéresse à des transitions vers des états excités $\psi_f = \psi_{n_1}^{|m_\ell|}(E)$, on trouve, pour

des énergies $E \lesssim E_c^p(n_1, |m_\ell|)$ (énergie critique parabolique des états n_1 dans un champ F), que la denstité partielle des forces d'oscillateurs $\frac{df}{dE}(n_1, |m_\ell|, E)$ présente une structure de résonances qui sont en fait associées aux résonances du type lorentzien de la densité partielle des états $C_{n_1}^{|m_\ell|}(E)$. On peut alors écrire :

$$\frac{df}{dE}(n_1,|m_\ell|,E) = \frac{df}{dE}(E_r)\,\frac{\frac{\Gamma^2}{4}}{(E-E_r)^2+\frac{\Gamma^2}{4}} \text{ pour } E \simeq E_r$$

où E_r et Γ désignent respectivement la position et la largeur de la résonance. On a vu que les fonctions d'ondes paraboliques $\psi_{n_1 n_2}^{m_\ell}$ en champ nul n'étaient pas en général symétriques par rapport au plan $z = o$ sauf toutefois dans le cas où $n_1 = n_2$.

Aussi, dans le cas d'une excitation $\pi(\Delta m_\ell = o)$ où l'opérateur de transition z est antisymétrique par rapport au plan $z = o$, l'élément de matrice $\langle \psi_{n_1 n_2}^{m_\ell} | z | \psi_{n_1' n_2'}^{m_\ell'} \rangle$ est rigoureusement nul si les deux fonctions d'ondes sont symétriques.

En conséquence, pour l'atome d'hydrogène non perturbé et pour une transition dipolaire électrique, on a une règle de sélection exacte : la transition $(n_1\ n_2\ m_\ell) \rightarrow (n_1'\ n_2'\ m_\ell')$ est interdite dans le cas où $n_1 = n_2$, $n_1' = n_2'$ et $m_\ell = m_\ell'$.

Lors d'une excitation σ^+ ou σ^- ($|\Delta m_\ell| = 1$) où l'opérateur de transition $x + iy$ ou $x - iy$ est symétrique par rapport au plan $z = o$, il n'existe pas de règle de sélection rigoureuse et, en conséquence, l'élément de matrice $\langle \psi_{n_1 n_2}^{m_\ell} | x \pm iy | \psi_{n_1' n_2'}^{m_\ell'} \rangle$ ne peut jamais être nul.

On peut arriver aux mêmes conclusions dans le cas où le champ électrique F est non nul parce que les fonctions d'ondes des états Stark quasi discrets caractérisés par $n_1 \simeq n_2$ sont pratiquement symétriques par rapport au plan $z = o$. Comme les constantes de séparation Z_1 et Z_2 sont peu différentes ($Z_1 \simeq Z_2$), les énergies cinétiques

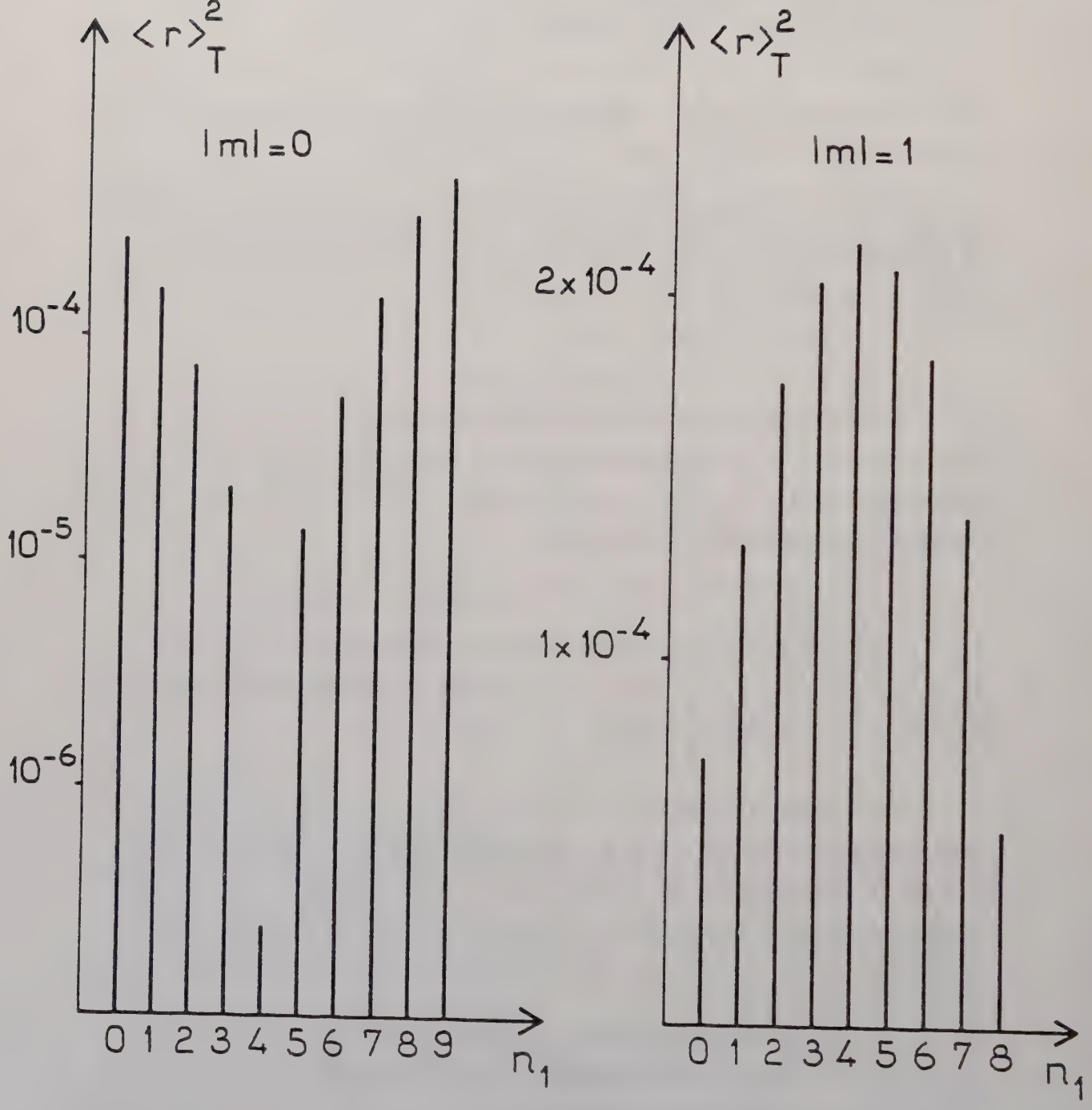


FIGURE I-9

Variation de l'élément de matrice $\langle r \rangle_T^2$ dans le cas de la transition $n=1 \rightarrow n=10$ ($F = 1,5 \times 10^{-5}$ u.a.).

effectives T_ξ et T_η sont presque égales au voisinage du noyau ($\eta \simeq \xi \simeq o$), parce que les termes dus au champ électrique F ($+ \frac{F}{8} \eta$ et $- \frac{F}{8} \xi$) sont négligeables. En conséquence, les fonctions d'ondes $f_{n_1 m_\ell}(\xi)$ et $g_{n_2 m_\ell}(\eta)$ sont pratiquement identiques. On s'est intéressé à la forme des fonctions d'ondes $f(\xi)$ et $g(\eta)$ au voisinage du noyau ($\eta \simeq \xi \simeq o$) car l'élément de matrice $< \psi_i \mid z \mid \psi_f >$ est différent de zéro uniquement dans le domaine d'extension de la fonction d'onde $|\psi_i >$ de l'état initial, c'est-à-dire au voisinage de l'origine.

Les fonctions d'ondes Stark de l'atome d'hydrogène $\psi^{m_\ell}_{n_1}(E)$ peuvent posséder des propriétés de symétrie bien définies par rapport au plan $z = o$, pour une valeur de l'énergie telle que $Z_1 \simeq Z_2$. La densité partielle de forces d'osicillateurs $\frac{df}{dE}(n_1, m_\ell, E)$ pourra s'annuler si, simultanément, l'état initial et l'état final de la transition et la polarisation de la lumière excitatrice, ont des propriétés de symétrie bien particulières par rapport au plan $z = o$.

L'existence d'annulations de la quantité $(\frac{df}{dE})$ dues à ces propriétés de symétrie a été mise en évidence dans l'étude du spectre de photoionisation de l'état fondamental de l'atome d'hydrogène placé dans un champ électrique [15, 16]. Nous allons rappeler ces résultats en analysant successivement le cas des transitions vers des états quasi discrets et celui des transitions vers des états continus dans le cas d'un champ intense.

Dans le cas d'une transition vers un état quasi discret, on peut définir une force totale d'oscillateur f_T en intégrant la densité partielle $\frac{df}{dE}$ sur tout le profil lorentzien de la résonance.

On obtient :

$$f_T(n_1, m_\ell, E_r) = \pi \frac{\Gamma(E_r)}{2} \frac{df}{dE}(n_1, m_\ell, E_r)$$

On a reporté sur la figure I.9 la valeur du produit

$$\Gamma(E, n_1, n_2, m_\ell) \times | < \psi_{ooo} \mid \vec{r} \mid \psi_{n_1 n_2 m_\ell} > |^2 ;$$

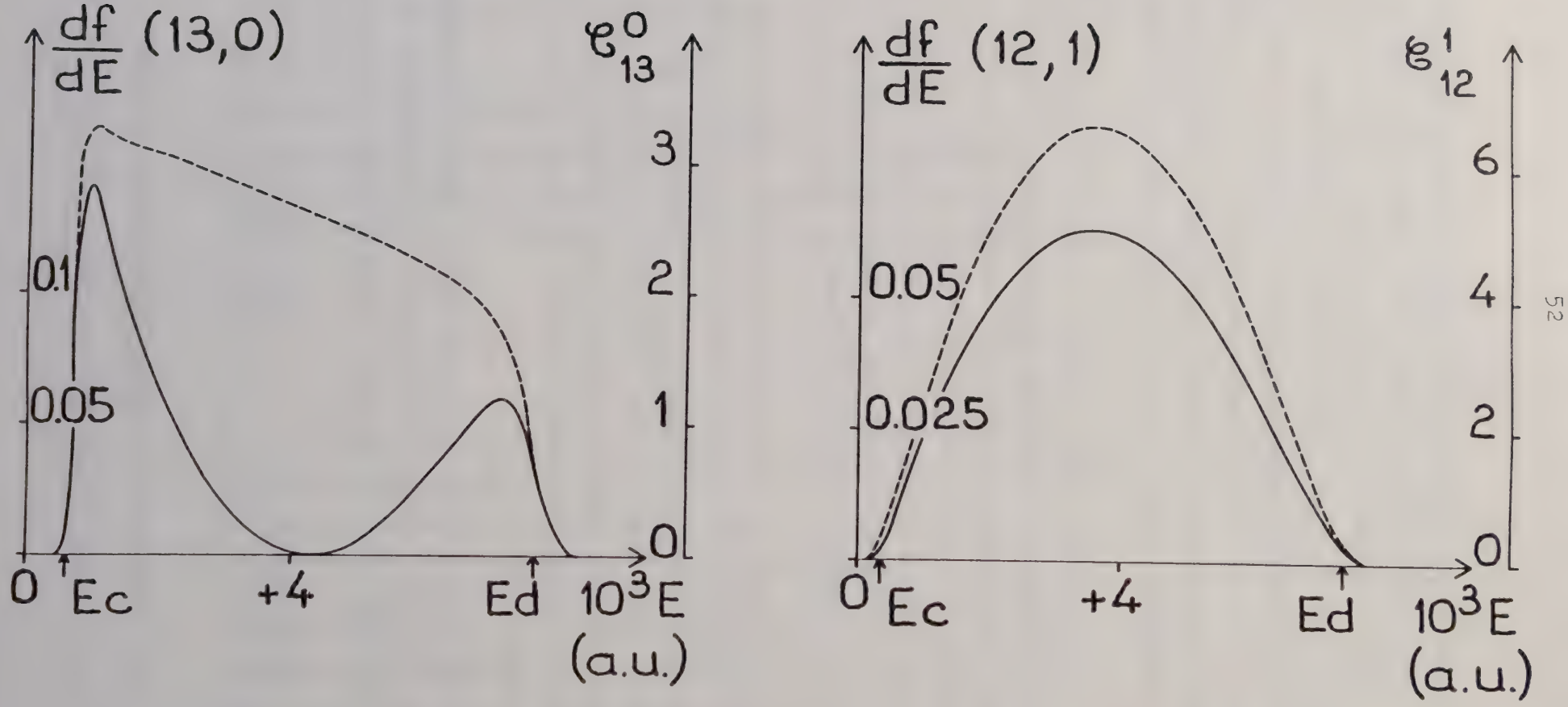


FIGURE I-10

Répartition en énergie de la densité partielle d'états (-----) et de la densité partielle de forces d'oscillateurs (——) : $m_\ell=0$ (gauche) et $|m_\ell|=1$ (droite) ($F = 1,5 \times 10^{-5}$ u.a.).

le calcul a été fait pour les transitions $n = 1 \quad m_\ell = o \rightarrow n = 10$, n_1, n_2 et $|m_\ell| = 0$ ou 1 et pour un champ $F = 10^{-5}$ u.a $= 1,6\ F_c$ $(n = 10)$.

Les variations de $|\langle \psi_{ooo} | \vec{r} |\ \psi_{n_1\ n_2\ m_\ell} \rangle|^2$ en fonction du nombre quantique n_1 sont très différentes dans les deux cas $|m_\ell| = o$ et 1. La courbe $|m_\ell| = 1$ varie très peu avec le nombre n_1 (on a un facteur 3 entre les valeurs $n_1 = o$ et $n_1 = 4$) ; en revanche, la courbe $m_\ell = o$ présente un minimum très significatif pour $n_1 \simeq n_2$ (on a un facteur 10^3 entre les valeurs $n_1 = o$ et $n_1 = 4$) qui est à relier aux propriétés de symétrie des fonctions d'ondes en présence d'un champ [16].

La figure I.10 montre, dans le cas d'une transition vers les états du continuum, la dépendance en énergie des densités partielles de forces d'oscillateurs $df(n_1, |m_\ell|, E)|dE$ en présence d'un champ intense $F = 10^{-5}$ u.a et pour des excitations π $(\Delta m_\ell = o)$ et σ $(|\Delta m_\ell| = 1)$.

Comme le domaine d'énergie étudiée est voisin de la limite d'ionisation en champ nul $(E = o)$, le spectre Stark est un spectre véritablement continu.

Comme la constante de séparation Z_1 est une fonction décroissante de l'énergie (figure I.5), l'égalité $Z_1 \simeq Z_2$ est réalisée pour une énergie E comprise entre $E_c^p(n_1, m_\ell)$ et $E_d(n_1)$ [29].

Ainsi, dans le cas d'une transition $\Delta m_\ell = o$, l'expression df/dE se présente sous la forme de deux résonances distinctes séparées par un minimum nul, tandis que pour une transition $|\Delta m_\ell| = 1$, $\frac{df}{dE}$ a l'allure d'une résonance très large.

A titre de comparaison, on a reporté sur cette figure les courbes de densités partielles d'états $C_{n_1}^{|m_\ell|}(E)$ pour les valeurs $m_\ell = o$ et $|m_\ell| = 1$. Dans le cas d'une excitation σ, on peut remarquer que les deux courbes $C(E)$ et $\frac{df}{dE}$ ont pratiquement la même allure ; en revanche, lors d'une transition π, les deux courbes ont des formes totalement différentes.

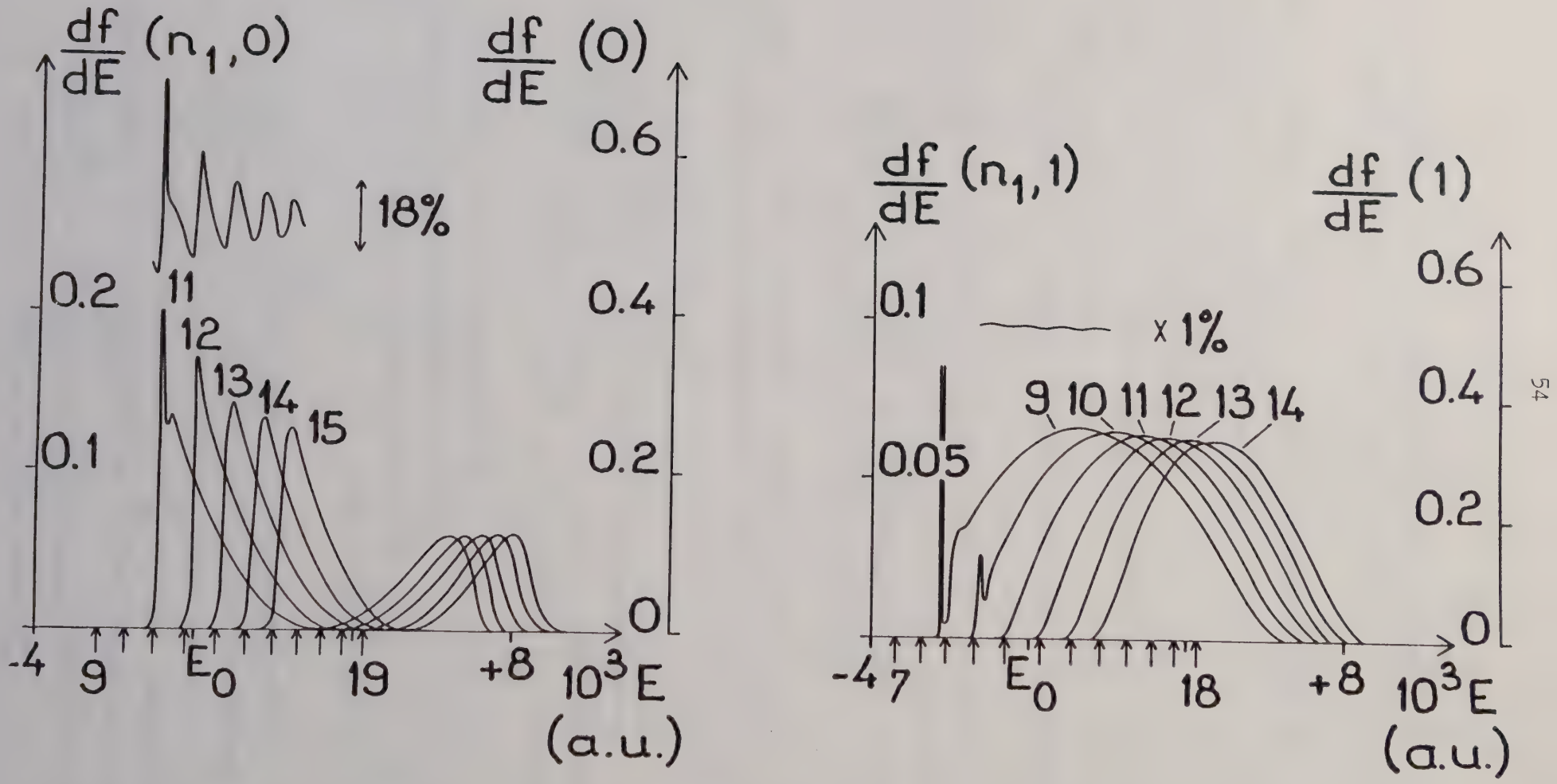


Figure I-11 : Répartition en énergie de la densité totale de forces d'oscillateurs dans les deux cas : $m_\ell=0$ (gauche) et $|m_\ell|=1$ (droite) $F = 1{,}5 \times 10^{-5}$ u.a.

La densité totale de forces d'oscillateurs $\frac{df}{dE}(|m_\ell|,E)$ s'obtient de la même manière que la densité totale d'états $c^{|m_\ell|}(E)$, c'est-à-dire en additionnant toutes les contributions partielles $\frac{df}{dE}(n_1,|m_\ell|,E)$ relatives aux différentes valeurs de n_1 :

$$\frac{df}{dE}(|m_\ell|, E) = \sum_{n_1=o}^{\infty} \frac{df}{dE}(n_1, |m_\ell|, E)$$

La figure I.11 montre les différentes contributions partielles $\frac{df}{dE}(n_1, |m_\ell|, E)$ ainsi que les sommes $\frac{df}{dE}(|m_\ell|, E)$ dans les cas $m_\ell = o$ et $m_\ell = 1$.

On peut remarquer que $\frac{df}{dE}$ ne présente aucune structure lors d'une transition $|\Delta m_\ell| = 1$ alors que dans le cas $\Delta m_\ell = o$ on peut observer une structure oscillante même au-delà de la limite d'ionisation en champ nul.

En effet, la quantité $\frac{df}{dE}(o,E)$ subit une forte augmentation toutes les fois que l'énergie E est égale aux différentes énergies critiques paraboliques $E_c^p(n_1, m_\ell = o)$. Ainsi, l'espacement des oscillations peut être estimé, avec une bonne approximation, à l'espacement entre deux énergies critiques consécutives.

Le taux de modulation de ces oscillations ne prend des valeurs notables (15 à 20 %) que pour des champs très intenses ($F \simeq 80$ kV/cm) ce qui ne manquera pas de présenter des difficultés d'ordre expérimental.

Une étude précise des conditions dans lesquelles seront observées les oscillations sera traitée en détail dans le chapitre IV.

Jusqu'à présent, on s'est intéressé uniquement à la section efficace de photoionisation de l'état fondamental S ($\ell = m_\ell = o$). Peut-on, à partir de ces résultats, connaître le comportement de la section efficace d'un état excité $|n\ell m_\ell>$ différent d'un état S ?

Dans le cas d'une excitation π ($\Delta m_\ell = o$) on a vu que l'élément de matrice $\langle \psi_i | z | \psi_f \rangle$ était nul uniquement si les deux fonctions d'ondes $|\psi_i\rangle$ et $|\psi_f\rangle$ étaient symétriques par rapport au plan $z = o$.

La condition de symétrie de la fonction d'onde $|\psi_i\rangle$ est réalisée si la somme $\ell + |m_\ell|$ des nombres quantiques ℓ et $|m_\ell|$ est paire. Quant à la fonction d'onde $|\psi_f\rangle$ sa symétrie sera assurée si les constantes de séparation Z_1 et Z_2 sont égales comme nous l'avons vu précédemment ($Z_1 \simeq Z_2$). Pour des états caractérisés par les nombres quantiques n_1 et $|m_\ell|$, la condition $Z_1 \simeq Z_2$ ne peut être vérifiée qu'au voisinage d'une valeur bien particulière de l'énergie.

Dans le cas d'une excitation σ ($|\Delta m_\ell| = 1$), l'élément de matrice $\langle \psi_i | x \pm iy | \psi_f \rangle$ pourrait être nul à la condition que les fonctions d'ondes $|\psi_i\rangle$ et $|\psi_f\rangle$ soient de symétrie opposée, car l'opérateur de transition $x \pm iy$ est pair.

Etant donné que la fonction d'onde $|\psi_f\rangle$ ne peut être que symétrique ($Z_1 \simeq Z_2$), la condition de l'antisymétrie de $|\psi_i\rangle$ sera satisfaite si la somme $\ell + |m_\ell|$ est, cette fois-ci, impaire.

La première observation que l'on pourrait faire est que des oscillations dans la section efficace de photoionisation pourront être observées aussi bien en excitation π qu'en excitation σ ; on retrouve naturellement les résultats obtenus dans le cas où $|\psi_i\rangle$ était un état $S(\ell = m_\ell = o)$.

La deuxième constatation, qui est peut-être la plus importante, est que les structures observées ne semblent pas dépendre uniquement de la valeur de $|m_\ell|$ de l'état $|\psi_f\rangle$ mais plutôt semblent être reliées à la valeur du $|\Delta m_\ell| = |m_f - m_i|$ de la transition étudiée [29].

On peut remarquer que la condition que nous venons d'établir repose uniquement sur l'étude des propriétés de symétrie des fonctions d'ondes. Cependant, la densité partielle de forces d'oscillateurs peut s'annuler si des phénomènes d'annulation apparaissent dans le calcul de l'élément

de matrice de l'opérateur de transition $\langle \psi_i | T | \psi_f \rangle$ indépendamment des propriétés de symétrie de ψ_i, T et ψ_f. De tels phénomènes d'annulation apparaissent par exemple dans l'étude du spectre de photoionisation des états S des atomes alcalins en l'absence de champ : la section efficace de photoionisation vers le continuum E_p s'annule pour une valeur particulière de l'énergie telle que

$$\int R_{ns} . r . R_{E_p} \, dr = 0$$

où R_{ns} et R_{E_p} sont les fonctions d'ondes radiales de l'électron de valence dans l'état initial et l'état final : il s'agit du minimum de Cooper [30]. Nous reviendrons sur ce point ultérieurement.

En conclusion de ce paragraphe, il apparaît que l'on peut prévoir l'allure du spectre de photoionisation de l'atome d'hydrogène en présence d'un champ F. Pour chaque valeur du champ F on peut définir trois domaines d'énergie différents (figure I.6c).

Dans le domaine (I), défini par $E \lesssim E_c = -2\sqrt{F}$, tous les états sont quasi stables.

Dans le domaine (II), situé entre la courbe (C) et la limite classique, le spectre se compose d'un fond de photoionisation sur lequel se superposent des résonances de largeurs différentes mais de forme lorentzienne; dans ces deux domaines d'énergie, les spectres de photoionisation sont pratiquement identiques quel que soit le type d'excitation ($|\Delta m_\ell| = o$ ou 1) et les positions des résonances peuvent être déterminées par un simple calcul de perturbations.

Dans le domaine (III), et plus particulièrement vers l'ancienne limite d'ionisation $E = o$ où le champ appliqué F est du même ordre de grandeur que le champ coulombien, il serait très intéressant de pouvoir vérifier si la structure oscillante de la section efficace de photoionisation dépend de la valeur de Δm_ℓ de la transition ou de la valeur de m_ℓ de l'état final ou de l'ensemble des deux.

De ces trois domaines d'énergie, seuls les deux derniers (II et III) nous ont semblé présenter un grand intérêt ; aussi, leur étude expérimentale approfondie fera l'objet des chapitres III et IV respectivement.

B - CAS DES ATOMES ALCALINS

Les états de Rydberg des atomes alcalins en présence d'un champ électrique ont fait l'objet d'une étude expérimentale extensive. Ce travail a porté tout d'abord sur la détermination des champs critiques et des vitesses d'ionisation des niveaux Stark puis ensuite sur la dépendance de la section efficace de photoionisation en fonction de l'énergie et du type d'excitation (σ ou π).

Bien qu'un modèle théorique basé sur la méthode du défaut quantique ait été élaboré [31] , malheureusement, aucune étude quantitative systématique des phénomènes observés n'a encore été effectuée à ce jour. C'est pour cette raison que l'on fera appel souvent au modèle hydrogénoïde pour rendre compte de l'effet Stark dans les alcalins.

En effet, certains résultats expérimentaux ont pu être interprétés dans le cadre du modèle hydrogénoïde. Pour ce qui est des résultats qui n'ont pu être interprétés avec ce modèle, le désaccord est attribué essentiellement au caractère non coulombien du potentiel d'interaction.

C'est ainsi que nous allons voir comment se modifie le spectre de l'atome d'hydrogène si on prend en considération la partie non coulombienne du potentiel d'interaction.

B 1. INFLUENCE DES ELECTRONS DU COEUR SUR LA STRUCTURE DES SPECTRES A UN ELECTRON OPTIQUE

Dans le cas des atomes à un électron optique isolés, les modifications des spectres dues à la perturbation liée au caractère non

coulombien du potentiel central sont spécialement bien connues et peuvent être analysées à partir de la connaissance des défauts quantiques.

La méthode du défaut quantique permet d'interpréter de façon synthétique un grand nombre de propriétés des états atomiques, en particulier celles des états discrets. L'étude de l'effet d'un champ électrique extérieur s'avère être plus délicate, au moins dans la zone surcritique où $E > -2\sqrt{F}$, compte tenu de la nature du spectre Stark de l'atome d'hydrogène.

En effet, des états quasi discrets sont alors dégénérés avec des états du continuum et, comme nous le verrons ci-dessous, toute interaction qui couple des états discrets à des états du continuum peut modifier profondément les propriétés des états discrets. Nous allons faire quelques rappels sur la contribution des électrons du coeur dans des spectres à un électron optique avant d'aborder plus particulièrement l'étude de l'effet Stark.

Comme le coeur de l'atome de Rydberg (c'est-à-dire l'ensemble formé par les électrons appartenant à l'état fondamental de l'ion une fois chargé) n'est plus ponctuel, on s'attend à deux types différents de contribution à l'interaction électron de valence - électrons du coeur :

* aux distances radiales $r < r_o$ (r_o = rayon moyen du coeur de l'atome) le potentiel est complètement modifié, affectant la dynamique de l'électron dans cette région limitée de l'espace. Les effets dits de courte portée peuvent être décrits par un potentiel central qui dépend fortement de l'atome considéré ;

* aux distances $r > r_o$ un développement multipolaire de l'interaction électron-coeur montre que le potentiel n'est coulombien qu'en première approximation. En effet, la répartition de charges dans le coeur de l'atome voit sa symétrie sphérique déformée par la présence de l'électron externe.

Ainsi, l'effet du coeur est décrit dans les deux cas par un potentiel $V(r)$ qui diffère de $\frac{-1}{r}$ aussi bien aux courtes qu'aux grandes distances ; il en résulte que la supersymétrie spécifique au potentiel coulombien est détruite. La première conséquence est que la dégénérescence par rapport au moment orbital ℓ des niveaux d'énergie est levée.

Notons que pour les atomes non perturbés, la symétrie sphérique de l'hamiltonien est conservée.

Le caractère non coulombien du potentiel dans lequel se déplace l'électron de valence est entièrement déterminé par la connaissance des défauts quantiques $\delta(E,\ell)$ (la dépendance en E de $\delta(E,\ell)$ peut être négligée en $1^{ère}$ approximation) des différents niveaux de moment cinétique orbital ℓ . Cette propriété est à la base de la méthode du défaut quantique [32, 33, 34] . A partir des valeurs expérimentales des énergies des différents niveaux d'un spectre, cette méthode conduit à déterminer de façon empirique les valeurs des défauts quantiques $\delta(E,\ell)$, ce qui permet de décrire de façon globale les différentes propriétés du spectre (forces d'oscillateurs, facteur de Landé, structure hyperfine, ...).

Compte tenu des valeurs possibles du défaut quantique $\delta(E,\ell)$, on est amené alors à considérer trois situations :

- La première correspond aux défauts quantiques proches de zéro ; c'est la situation où seuls les effets à longue portée contribuent à $\delta(E,\ell)$. C'est ainsi que la probabilité de présence de l'électron de valence près du noyau est nulle ("orbites non pénétrantes") ; or, ceci n'est possible que si le moment cinétique orbital ℓ de l'électron est grand ($\ell > 3$ pour Na et $\ell > 4$ pour Rb) (effet de polarisation).

En conséquence, les états atomiques excités, caractérisés par de grandes valeurs de ℓ, ont un comportement hydrogénique.

- La deuxième correspond aux défauts quantiques grands ; c'est la situation où l'effet du coeur est très important.

La probabilité de présence de l'électron extérieur au voisinage du coeur est très grande ("orbites pénétrantes"), ce qui n'est possible que pour les faibles valeurs de ℓ ($\ell = 0$ ou 1 pour Na et $\ell = 0,1$ ou 2 pour Rb). Ainsi donc, le comportement de tels états atomiques excités à faibles valeurs de ℓ est fortement non hydrogénique, compte tenu du caractère non coulombien du potentiel d'interaction (effet de pénétration).

- La dernière est une situation intermédiaire entre les deux précédentes ; c'est le cas où les contributions à $\delta(E,\ell)$ des effets à courte portée et à longue portée sont du même ordre de grandeur.

Les états $D(\ell = 2)$ du sodium et $F(\ell = 3)$ du rubidium sont un exemple typique de ce cas intermédiaire.

Dans le cas où l'atome est perturbé par un champ électrique extérieur, la symétrie parabolique est bien adaptée à la description du problème dans la mesure où, loin du noyau, la forme asymptotique du potentiel d'interaction auquel est soumis l'électron de valence est donnée par le potentiel $-\frac{1}{r} + Fz$ (Coulomb + Stark).

Cependant, la présence du potentiel perturbateur $V(r)$ détruit la symétrie spécifique au problème de l'effet Stark de l'atome d'hydrogène. En conséquence, la projection M_z du vecteur de Runge-Lenz généralisé n'est plus une constante du mouvement et l'hamiltonien H du système peut alors être mis sous la forme :

$$H = H_S + H_{NS} \qquad \text{où}$$

- H_S représente la partie séparable (en coordonnées paraboliques) de l'hamiltonien H ; H_S s'identifie à l'hamiltonien non relativiste de l'atome d'hydrogène en présence d'un champ électrique ($H_S = \frac{p^2}{2} - \frac{1}{r} + Fz$)

- H_{NS} représente la partie non séparable de l'hamiltonien H. Il regroupe toutes les interactions qui font perdre au système la symétrie parabolique, principalement l'interaction électrostatique entre l'électron de valence et l'ensemble électrons du coeur - noyau (potentiel d'interaction non coulombien) puis, éventuellement, l'interaction spin-orbite dans le cas des alcalins lourds.

Dans le cas de l'hydrogène ($H_{NS} = 0$), les constantes du mouvement sont $E, |m_\ell|$ et Z_1 (ou n_1) et les fonctions d'ondes $|E, m_\ell, n_1\rangle$ sont alors complètement définies. Comme on l'a vu précédemment, les états propres du système associés à des valeurs différentes de $|m_\ell|$ ou de Z_1 peuvent avoir la même énergie. Ces états, qui ne sont pas couplés, se croisent :

$$\langle E\, m_\ell\, Z_1 \mid H_S \mid E\, m'_\ell\, Z'_1 \rangle = E\, \delta_{m_\ell, m'_\ell}\, \delta_{Z_1, Z'_1}$$

Dans le cas d'un atome quelconque, l'hamiltonien H_{NS} est non nul (il sera identifié dans la suite de l'exposé à un potentiel central correspondant à l'interaction électrostatique). Comme H_{NS} commute avec l'opérateur moment cinétique orbital, $|m_\ell|$ reste un bon nombre quantique. En revanche, Z_1 n'est plus une constante du mouvement. L'élément de matrice :

$$\langle E, m_\ell, Z_1 \mid H_{NS} \mid E, m_\ell, Z'_1 \rangle$$

n'est plus nul et en conséquence les niveaux d'énergie ayant la même valeur de $|m_\ell|$ se repoussent (anticroisement de niveaux).

Dans le domaine $E > -2\sqrt{F}$ du diagramme (E,F), il existe des états propres de H_S de type quasi discret ainsi que des états appartenant à de véritables continuums ; ces états de nature très différente sont dégénérés. L'effet de l'interaction H_{NS} est de coupler des états quasi discrets aux états du continuum, ce qui modifie profondément les propriétés d'ionisation par champ des états discrets.

Récemment, FANO a proposé un formalisme permettant de calculer les sections efficaces de photoionisation d'atomes alcalins en présence d'un champ électrique. Ce formalisme est basé sur la méthode du défaut quantique et sur une transformation unitaire permettant de relier les coordonnées paraboliques aux coordonnées sphériques [35]. Ces deux systèmes sont bien adaptés à l'étude des fonctions d'ondes respectivement loin du noyau où la forme asymptotique du potentiel d'interaction est donnée par $-\frac{1}{r} + Fz$ et près du noyau où les effets dus aux électrons du coeur sont prédominants. Ce formalisme permet de calculer de façon globale les sections efficaces de photoionisation d'un atome alcalin en présence d'un champ électrique si on connaît, d'une part les fonctions d'ondes de l'atome d'hydrogène perturbé par un champ électrique et, d'autre part, les sections efficaces de photoionisation et les défauts quantiques de l'atome non perturbé.

A notre connaissance, il n'existe à ce jour aucune application de cette méthode qui, de plus, ne permet pas d'interpréter simplement la nature des phénomènes physiques mis en jeu. C'est pourquoi, nous ne ferons pas appel à cette méthode dans la suite de notre exposé.

B 2. CARACTERISTIQUES DE L'EFFET STARK DANS LES ATOMES ALCALINS

Nous allons tout d'abord rappeler les points principaux de l'effet Stark des atomes alcalins.

Lorsque ces études ont été entreprises, on pensait pouvoir analyser simplement les résultats expérimentaux en partant des connaissances théoriques acquises dans l'étude de l'effet Stark de l'hydrogène, puisque la forme asymptotique du potentiel d'interaction n'est autre que le potentiel Coulomb + Stark. Cependant, les expériences ont permis de mettre en évidence une très grande différence de comportement entre l'hydrogène et les autres atomes, y compris les atomes à un électron optique.

Dans la zone sous-critique ($E < -2\sqrt{F}$) les études de spectroscopie de position ont montré que les spectres des alcalins ressemblaient à celui de l'hydrogène, mis à part deux phénomènes.

Tout d'abord, les niveaux dont le défaut quantique n'est pas égal à un nombre entier (niveaux S, P, D) présentent un effet Stark quadratique en champ faible, car ils ne sont pas dégénérés en champ nul. En revanche, l'ensemble des niveaux de moment angulaire orbital élevé ($\ell > 4$) présente, comme dans l'hydrogène, un effet Stark linéaire.

D'autre part, les niveaux de même nombre quantique magnétique $|m_\ell|$ ne se croisent pas comme dans l'hydrogène, mais présentent des anticroisements d'autant plus larges que le caractère non hydrogénoïde est plus prononcé. En effet, les états quasi discrets qui sont dégénérés dans l'approximation hydrogénoïde sont couplés par la perturbation H_{NS} dans le cas d'atomes alcalins.

L'étude expérimentale de l'ionisation par champ a montré que les différents niveaux d'énergie E s'ionisent dès que l'intensité du champ électrique est supérieure à $F_c = E^2/4$. Les seuils d'ionisation des alcalins obéissent ainsi à la loi classique obtenue dans un modèle à une dimension et n'ont rien de commun avec les seuils d'ionisation paraboliques caractéristiques de l'hydrogène.

Pour rendre compte de la différence dans les propriétés d'ionisation par champ entre l'hydrogène et les alcalins, LITTMANN et ses collaborateurs [36] ont avancé une explication qui repose sur la différence dans les propriétés de symétrie des hamiltoniens décrivant les deux systèmes.

Dans le cas de l'hydrogène, les états Stark quasi stables de la région II provenant d'une multiplicité n (figure I.6c) baignent dans les continuums d'ionisation provenant de multiplicités supérieures à n ; même en présence du champ, la séparabilité en coordonnées

paraboliques permet d'introduire de bons nombres quantiques et, par conséquent, des règles de sélection : il n'existe alors aucune interaction entre ces états quasi stables et ces continuums d'ionisation.

Au contraire, lorsque cette séparabilité disparaît à cause du caractère non coulombien du potentiel d'interaction entre l'électron extérieur et le coeur de l'atome, il existe alors une interaction entre les différents niveaux Stark, notamment entre des niveaux quasi discrets et des niveaux qui ont une forte probabilité d'ionisation par effet tunnel, ces niveaux formant le continuum. Cette interaction permet à ces niveaux quasi stables de s'ioniser grâce à un mécanisme analogue à l'autoionisation dans les atomes à plusieurs électrons ou à la prédissociation moléculaire.

Compte tenu du rôle important joué dans la région surcritique ($E > -2\sqrt{F}$) par la perturbation H_{NS} qui couple des états quasi discrets à des continuums, nous allons analyser de façon plus formelle les effets associés à une perturbation qui couple un état discret à un continuum.

Supposons qu'un hamiltonien non perturbé H_S ait pour états propres d'une part un état discret $|\phi_i>$ d'énergie E_i et, d'autre part un ensemble d'états $|\alpha>$ d'énergie E formant un continuum dont la densité d'états est égale à l'unité, quelle que soit la valeur de l'énergie E. On peut écrire :

$$H_S |\phi_i> = E_i |\phi_i>$$

$$H_S |\alpha> = E |\alpha>$$

Considérons une perturbation H_{NS} qui couple l'état discret $|\phi_i>$ aux états $|\alpha>$ du continuum, mais qui ne modifie ni cet état discret, ni les états du continuum

$$(<\phi_i | H_{NS} | \phi_i> = <\alpha | H_{NS} | \alpha> = 0)$$

Le seul élément de matrice non nul pour H_{NS} est l'élément non diagonal $\langle \phi_i \mid H_{NS} \mid \alpha \rangle$. Si, à l'instant initial le système est dans l'état $|\phi_i\rangle$, il va évoluer parce que $|\phi_i\rangle$ n'est pas un état propre de l'hamiltonien total $H = H_S + H_{NS}$.

On peut développer l'état $|\psi\rangle$ du système sur la base $\{|\phi_i\rangle, |\alpha\rangle\}$ [37] :

$$|\psi(t)\rangle = b_i(t)\, e^{-i E_i t} |\phi_i\rangle + \int d\alpha\; b(\alpha,t)\, e^{-i E t} |\alpha\rangle$$

Les équations d'évolution du système sont données par l'équation de Schrodinger dépendant du temps, soit :

$$\begin{cases} i \dfrac{d}{dt} b_i(t) = \displaystyle\int d\alpha\, e^{i(E_i - E)t} \langle \phi_i \mid H_{NS} \mid \alpha \rangle\; b(\alpha,t) \\ i \dfrac{d}{dt} b(\alpha,t) = e^{i(E - E_i)t} \langle \alpha \mid H_{NS} \mid \phi_i \rangle\; b_i(t) \end{cases}$$

La simplicité de ce système d'équations provient du fait que les seuls éléments de matrice non nuls de H_{NS} sont ceux qui relient l'état discret $|\phi_i\rangle$ aux états $|\alpha\rangle$ du continuum.

Pour des temps t suffisamment courts, on peut résoudre les équations ci-dessus par un traitement perturbatif.

Compte tenu des conditions initiales $b_i(o) = 1$ et $b(\alpha,o) = 0$, les solutions de ces équations intégrodifférentielles sont :

$$\begin{cases} b_i(t) = e^{-\Gamma t/2}\, e^{-i.\delta E.t} \\ b(\alpha,t) = \langle \alpha | H_{NS} | \phi_i \rangle \cdot \dfrac{1 - e^{-\Gamma t/2}\, e^{i(E - E_i - \delta E)t}}{(E - E_i - \delta E) + i \dfrac{\Gamma}{2}} \end{cases}$$

où $$\Gamma(E) = 2\pi \left| \langle \alpha \left| H_{NS} \right| \phi_i \rangle \right|^2_{E = E_i}$$

caractérise l'intensité du couplage de l'état discret avec l'état du continuum de même énergie

et $$\delta E = P.P \int d\alpha \; \frac{\left| \langle \alpha \left| H_{NS} \right| \phi_i \rangle \right|^2}{E_i - E}$$

représente au deuxième ordre de la théorie des perturbations le déplacement du niveau discret $|\phi_i\rangle$ dû au couplage avec les états $|\alpha\rangle$ du continuum. Ces résultats sont valables au bout d'un temps suffisamment long devant $1/L$, où L représente la largeur de la courbe $\Gamma(E)$ c'est-à-dire la largeur du continuum.

Les équations $b_i(t)$ et $b(\alpha,t)$ décrivent respectivement comment l'état initial $|\phi_i\rangle$ "se vide" et comment les états $|\alpha\rangle$ du continuum "se remplissent".

Sous l'effet du couplage ($\langle\alpha| H_{NS} |\phi_i\rangle \neq 0$) avec les états $|\alpha\rangle$ de même énergie, le niveau $|\phi_i\rangle$ acquiert une durée de vie limitée égale à Γ^{-1}.

La probabilité $|b_i(t)|^2$ de trouver le système à l'instant t dans l'état "discret $|\phi_i\rangle$" décroît de façon irréversible à partir de $|b_i(o)|^2 = 1$ et tend vers zéro quand $t \to \infty$.

Quant à la probabilité dP de trouver le système, à un instant $t \gg \Gamma^{-1}$, dans un groupe d'états centrés autour de $E = E_i$, elle est proportionnelle à

$$|b(\alpha,t)|^2_{t \to \infty} \simeq \left| \langle \alpha \left| H_{NS} \right| \phi_i \rangle \right|^2 \; \frac{1}{(E-E_i - \delta E)^2 + \Gamma^2/4}$$

c'est-à-dire au carré de l'élément de matrice $\langle \alpha \left| H_{NS} \right| \phi_i \rangle$.

Dans le cas de l'effet Stark d'un atome non hydrogénoïde, on pourra ainsi observer une résonance dont la largeur et la forme vont dépendre essentiellement de l'intensité $|\langle \alpha | H_{NS} | \phi_i \rangle|^2$ du couplage, c'est-à-dire du caractère non hydrogénoïde du niveau considéré.

Ce couplage est d'autant plus grand que l'état discret en question est moins hydrogénoïde. Ainsi, pour un atome donné, les états $m_\ell = o$, qui sont les plus fortement non hydrogénoïdes, compte tenu du fait qu'ils sont d'abord les seuls à contenir un caractère S ($\ell = o$) et qu'ensuite les états S sont ceux qui ont les plus grands défauts quantiques, sont beaucoup plus couplés au continuum que les états $|m_\ell| = 1$ ou 2.

De plus, l'importance du caractère non hydrogénoïde dépend de l'alcalin considéré : elle croît avec le numéro atomique de l'élément étudié.

En fait, les structures Stark de la zone II, devenues instables du fait de leur couplage avec le continuum, ne sont observables que si ce couplage est optimal. En effet, dans le cas d'un alcalin lourd (Rb), les états de $|m_\ell|$ élevé sont plus facilement observables que ceux dont le $|m_\ell|$ est faible ($m_\ell = o$) car ces derniers sont complètement noyés dans le continuum.

En revanche, dans le cas d'un alcalin léger (Li), les états de $|m_\ell|$ faible sont plus facilement observables que les états de $|m_\ell|$ élevé, lesquels sont pratiquement hydrogénoïdes [36].

En résumé, on peut dire que l'ionisation due au couplage sera d'autant plus intense que les niveaux seront fortement couplés au continuum, donc fortement non hydrogénoïdes.

Compte tenu de toutes ces considérations, quelle est alors la structure du spectre Stark de l'atome alcalin ? Tout comme dans le cas de l'hydrogène, on peut distinguer trois types de régions (figure I.6c).

Dans la région I, il n'y a que des structures Stark quasi stables ; toutefois, comme la dégénérescence en ℓ est levée, les états à grand défaut quantique (états S,P pour Na et S,P,D pour Rb) présentent un effet Stark quadratique en champ faible alors que les états à petit défaut quantique, tous dégénérés en champ nul, présentent un effet Stark linéaire.

Cependant, pour des champs $F > F_i = \frac{1}{3n^5}$, valeur pour laquelle a lieu le croisement entre les niveaux $|n, m_\ell, n_1 = n - 1\rangle$ et $|n + 1, m_\ell, n_1 = o\rangle$ des multiplicités n et n+1, tous les croisements de niveaux, qui existent dans l'hydrogène du fait de la symétrie parabolique, doivent être remplacés par des anticroisements à cause du couplage qui rompt cette symétrie.

Le calcul des perturbations au premier ordre permet d'évaluer F_i :

$$-\frac{1}{2n^2} + \frac{3}{2} F_i\, n\,(n-1) = -\frac{1}{2(n+1)^2} - \frac{3}{2} F\,(n+1)\,n \quad \text{soit} \quad F_i = \frac{1}{3n^5}$$

Dans cette région, la position des niveaux Stark peut se calculer en diagonalisant la matrice énergie sur une base restreinte d'états non perturbés décrits par des fonctions hydrogénoïdes [38, 39] .

La largeur des anticroisements peut être évaluée simplement en fonction des nombres quantiques paraboliques et des défauts quantiques de l'atome non perturbé [40].

Les intensités des raies dans le spectre d'absorption d'un alcalin en présence d'un champ électrique diffèrent fondamentalement de celles calculées dans le spectre de l'hydrogène. Par exemple, les règles de sélection obtenues pour l'hydrogène cessent d'être valables parce que le système ne présente plus la symétrie parabolique [38, 39]. Il est cependant possible de calculer les intensités des raies et leur évolution en fonction de l'intensité du champ électrique si on introduit

dans le calcul des intégrales radiales de l'opérateur de transition des valeurs numériques spécifiques de l'alcalin étudié. D'autre part, lorsque l'intensité du champ croît, les intensités des deux transitions vers les deux niveaux associés au même anticroisement sont profondément modifiées [38].

En effet, au voisinage d'un anticroisement, les fonctions d'ondes de ces deux niveaux se perturbent notablement ; l'amplitude du mélange de ces deux fonctions d'ondes varie rapidement quand l'intensité du champ croît. En conséquence, des phénomènes d'interférences plus ou moins prononcés apparaissent dans le calcul des éléments de matrice de l'opération transition, ce qui perturbe les intensités.

Ces anticroisements, très importants dans les spectres $m_\ell = o$ mais négligeables dans les spectres de $|m_\ell|$ élevés, vont jouer un grand rôle dans le processus d'ionisation par champ.

Compte tenu des vitesses de montée du champ électrique ($\sim 10^{10}$ V/cm.s) et du fait que la probabilité de transition non adiabatique dépend exponentiellement de l'importance de l'anticroisement, on peut comprendre l'existence de seuils d'ionisation multiples [41, 42, 43] .

En conclusion, on peut dire que l'analyse des résultats obtenus dans la zone I par des études de spectroscopie de position permet d'évaluer l'importance des interactions de caractère non hydrogénoïde.

Dans la région II, on peut faire des études de section efficace de photoionisation en présence d'un champ électrique. A la différence du cas de l'hydrogène, il y a cette fois une interaction entre les structures Stark pseudo stables et les continuums d'ionisation issus de niveaux supérieurs.

Ce couplage, dont l'intensité dépend essentiellement de l'importance du caractère non coulombien de l'interaction électron optique - coeur de l'atome, fait en sorte que le phénomène d'ionisation apparaît

pour tous les niveaux dès que l'on traverse la limite classique ; en effet, un niveau Stark provenant d'une multiplicité n_o donnée se couplera avec des niveaux Stark "descendants" provenant de multiplicités n supérieures à n_o qui, eux, sont déjà ionisés. On a donc affaire à un phénomène d'ionisation par couplage avec des niveaux instables venant de valeurs de n supérieures.

Que peut-on dire sur les largeurs et les formes de résonances Stark qui apparaissent dans la région II ? Elles dépendent essentiellement de l'intensité de couplage discret - continuum ; ainsi, on peut envisager selon l'ordre de grandeur de ce couplage trois situations différentes :

1°/ D'abord le couplage est très intense à tel point que les structures Stark sont très larges ($\Delta\nu > 1\ cm^{-1}$) ; elles peuvent même disparaître pour se fondre dans le continuum. L'allure de ces structures est alors très semblable à celle des résonances de type (α) rencontrées dans l'hydrogène (figure I.6c).

2°/ Ensuite, le couplage peut être complètement négligeable ; les résonances observées sont alors identiques à celles calculées dans le cas de l'hydrogène et elles sont alors du type (α) et (β) ; quant aux résonances du type (γ) on ne peut pas les observer dans un spectre de photoionisation, car elles sont associées à des états très stables dont le taux d'ionisation est négligeable pendant la durée de l'observation.

3°/ Enfin, quand on est dans le cas intermédiaire, les très larges résonances du type (α), dues uniquement à l'ionisation par effet tunnel, s'observent toujours. En revanche, et c'est là la très grande différence par rapport à l'hydrogène, les résonances du type (γ) pourront être observées grâce au couplage discret - continuum. Leur largeur peut devenir comparable à celle des résonances (β) dont l'élargissement est dû à l'effet tunnel dans le cas de l'atome d'hydrogène. Si les résonances (γ) et (β) ont à peu près les mêmes largeurs, par contre , leurs profils sont totalement différents ; en effet, alors que le profil des

raies (β) est symétrique (profil lorentzien), celui des raies (γ) est dissymétrique (profil de Fano) ; de plus, l'importance de l'asymétrie du profil donne une idée du degré de couplage avec le continuum.

En général, il est difficile de faire une distinction entre les raies (β) et (γ) à moins de procéder à une analyse très fine des profils de raie, ce que nous ferons dans le cas du rubidium, afin de connaître le mécanisme d'ionisation (effet tunnel, interaction discret - continuum ou mélange des deux).

D'autre part, les profils du type (β) sont aussi modifiés par le caractère non coulombien de la perturbation, ce qui revient à étudier l'effet d'une perturbation agissant sur un état large (ou un continuum relativement étroit de profil lorentzien).

Enfin, lorsque le spectre de photoionisation met en jeu un grand nombre de résonances de largeur non négligeable, il y a recouvrement entre les différents états perturbés. Il n'est plus alors possible de considérer séparément chacune des résonances. Dans ce cas, seul est valable un traitement global de l'interaction entre l'ensemble des états quasi discrets et le continuum. Nous reviendrons sur ce point ultérieurement.

Les résultats expérimentaux montrent que la description de l'effet Stark dans les alcalins peut être insuffisante si on ne considère que la seule interaction entre un niveau quasi discret unique et un continuum.

En effet, si on caractérise un état quasi discret par un ensemble de nombres quantiques paraboliques tout en tenant compte du caractère non hydrogénoïde du spectre, on prévoit que l'intensité du couplage avec le continuum ne varie pas de façon significative lorsque l'intensité du champ électrique croît. En outre, tous les états quasi discrets doivent avoir des largeurs comparables puisque, pour des valeurs de $|m_\ell|$ et de n fixées, le développement d'un état parabolique quelconque

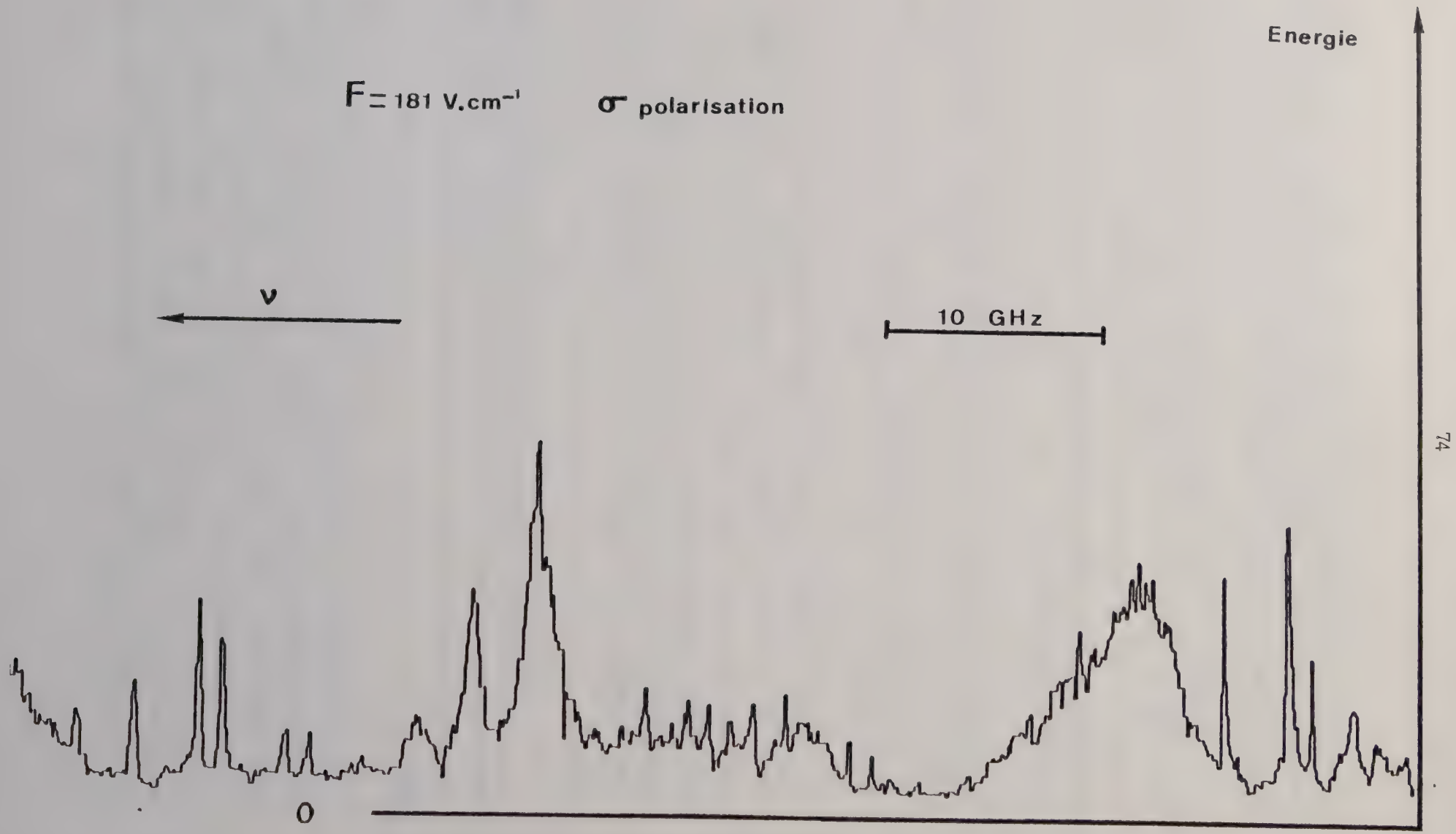


FIGURE I-12 : Spectre de photoionisation typique obtenu au voisinage de la limite d'ionisation classique.

$|n_1\ n_2\ |m_\ell|\rangle$ sur la base des états sphériques $|n\ \ell\ m_\ell\rangle$ fait apparaître l'état $\ell = |m_\ell|$, c'est-à-dire l'état qui possède le plus grand défaut quantique.

C'est ainsi que les expériences, faites sur le spectre $|m_\ell| = 1$ du lithium, montrent que la largeur des niveaux reste approximativement constante jusqu'à la valeur du champ critique parabolique [36].

En revanche, au voisinage des anticroisements, le couplage entre un état discret donné et le continuum peut varier localement de façon très importante, du fait de l'interaction entre l'état considéré et un autre état.

Ainsi, le même type d'expérience, que celui effectué sur le lithium, a montré de façon incontestable, dans le cas du spectre $|m_\ell| = 2$ du sodium, que le couplage discret - continuum peut subir des variations locales très importantes [44].

Ces deux expériences, faites dans le cas où le couplage est intermédiaire, montrent que la description du couplage discret - continuum en termes de défauts quantiques peut apparaître comme insuffisante. Aussi, pour mieux décrire l'interaction discret - continuum, il faut connaître la densité d'états du continuum ainsi que la nature de la perturbation qui induit ce couplage ; en effet, cette perturbation peut être, soit l'interaction électrostatique électron extérieur - électrons du coeur, soit l'interaction spin - orbite, et ceci en particulier dans le cas d'atome alcalin lourd tel que le rubidium.

C'est ainsi que dans un spectre de $|m_\ell|$ donné, on peut trouver les trois types de résonances selon la nature de l'interaction et la valeur de l'élément de matrice de cette interaction.

La figure I.12 montre un spectre assez typique de la zone II ; on peut remarquer que, mis à part des raies très larges ($\Delta\nu \gtrsim 0{,}2 cm^{-1}$), toutes les raies fines semblent avoir le même profil symétrique (largeur $\simeq$ 500 MHz)

En conséquence, une étude à très haute résolution semble s'imposer dans cette zone. De plus, l'étude de cette région, et tout particulièrement l'analyse du voisinage de la limite classique, nous a semblé très intéressante en ce sens qu'elle se prête bien à l'étude de l'influence de l'intensité du couplage discret - continuum sur les spectres de photoionisation.

Comme la plage de fonctionnement de notre laser pulsé monomode se limite au domaine ultra-violet ($\lambda \simeq 2950$ Å à 3000 Å), le travail n'a pu être fait que sur les états excités de l'atome de rubidium.

Enfin, dans la région III, située au-delà de la courbe (C), il n'y a que des continuums d'ionisation. L'intérêt de l'étude de cette région réside dans le fait que la perturbation induite par le champ électrique appliqué est du même ordre de grandeur que l'interaction coulombienne.

On peut s'attendre ainsi à une modification de la section efficace de photoionisation en présence de champ et, dans ce cas, comparer les résultats expérimentaux aux résultats théoriques obtenus dans l'hydrogène.

Ce travail, que l'on ne pourra pas faire à très haute résolution pour des raisons qui seront exposées au chapitre IV, portera sur deux atomes alcalins : le sodium et le rubidium.

Le choix d'un alcalin léger et d'un alcalin lourd mettra en évidence le rôle joué par l'interaction spin - orbite dans les spectres de photoionisation.

Chapitre II

DESCRIPTION DU DISPOSITIF EXPERIMENTAL

La spectroscopie à haute résolution par absorption à un photon des états atomiques très excités d'atomes alcalins nécessite un rayonnement de faible largeur spectrale ($\Delta\nu \simeq 50$ MHz) et dont la longueur d'onde se situe dans le domaine ultra-violet ($\lambda \simeq 2300$ Å pour le lithium à $\lambda \simeq 3190$ Å pour le césium).

Le plus simple procédé de génération de ce rayonnement ultra-violet est le doublage en fréquence d'un rayonnement visible ; toutefois ce mécanisme de conversion, basé uniquement sur des effets non linéaires, n'a un rendement appréciable que pour des puissances incidentes assez élevées.

Or on sait qu'il est difficile de réaliser simultanément les fonctions "forte puissance" et "grande pureté spectrale" dans la même cavité laser ; pour y arriver nous avons réalisé un laser qui délivre à la fois un rayonnement intense et de grande pureté spectrale, dont le principe de fonctionnement s'inspire beaucoup du laser à injection.

La spectroscopie à très haute résolution sans effet Doppler (détermination des énergies des niveaux excités, mesure de structure fine,...) peut se faire soit sur une vapeur atomique (absorption saturée, transitions à deux photons,...) [45] , soit sur un jet atomique [46] .

Toutefois l'étude du comportement d'un atome excité dans un champ électrique (détermination du champ critique d'ionisation, mesure de durées de vie à l'ionisation,...) ne peut être effectuée que dans un milieu sans collision (jet atomique). En effet dans une vapeur, la section efficace d'ionisation par collisions des atomes excités est si importante qu'elle peut être utilisée comme moyen de détection des atomes de

Rydberg ; mais dans ce cas elle masque entièrement la contribution du champ électrique dans le processus d'ionisation.

Avant de rappeler les principales propriétés du laser à injection, nous donnerons une description du jet atomique que nous avons utilisé.

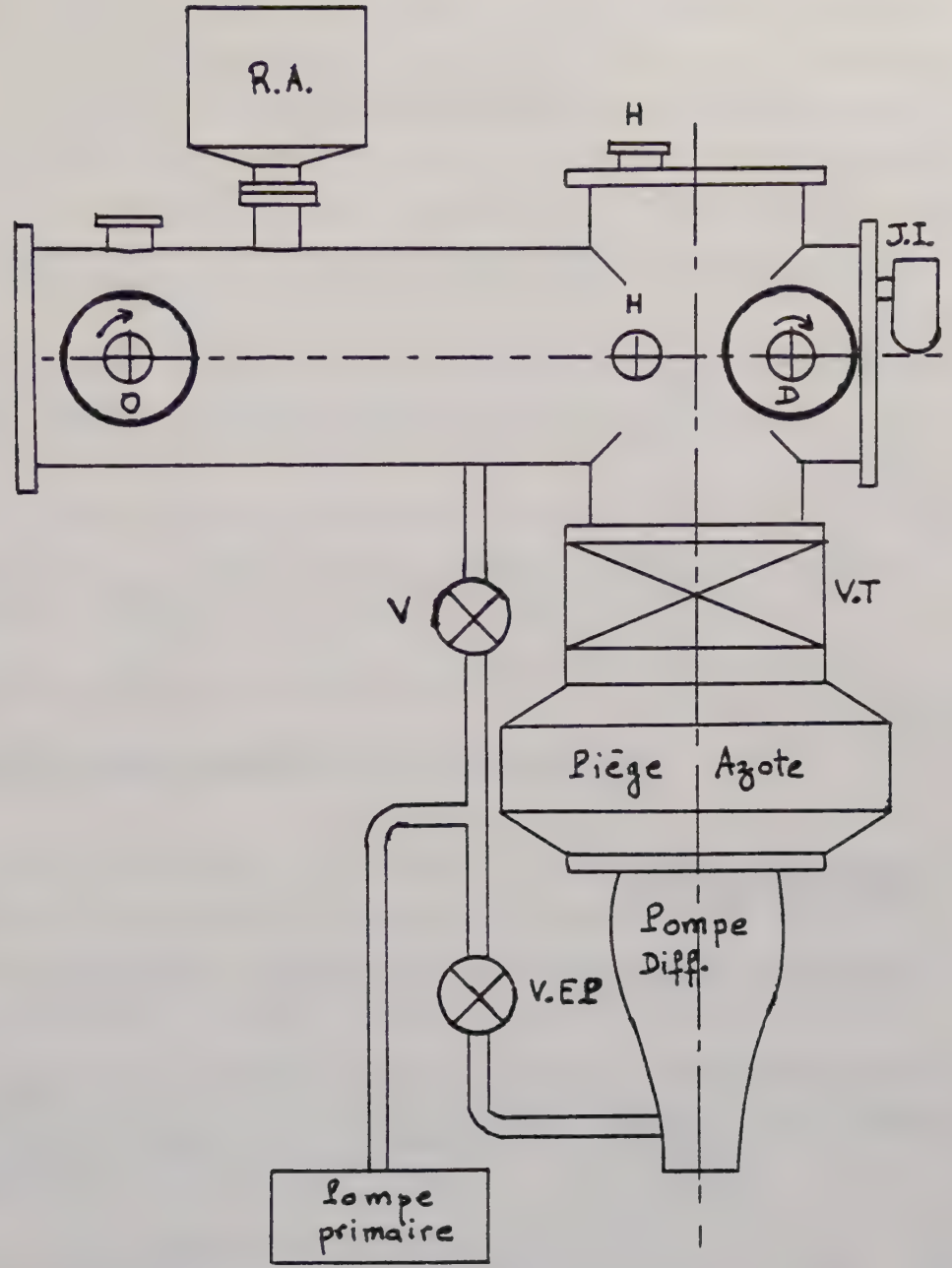


FIGURE II-1

Schéma simplifié de l'appareil.

R.A. : Réservoir d'azote liquide - J.I. : jauge à ionisation

H : hublots - V : vanne manuelle - V.T. vanne à tiroir

V.E.T. : vanne électropneumatique - O : four - D : détecteur.

A - LE JET ATOMIQUE

Cet appareil de jet atomique comporte essentiellement trois parties :

- Le four (production des atomes) et la définition du jet atomique (collimation).

- La zone d'interaction des atomes avec le rayonnement optique.

- La détection des ions (multiplicateur d'électrons) et le traitement du signal.

A 1. L'ENCEINTE. LE VIDE

La figure II 1 présente un schéma simplifié de cet appareil .

Le pompage de la chambre est assuré par un groupe de pompage comprenant une pompe primaire Alcatel type 2012 deux étages 15 m^3/h en série avec une pompe secondaire à diffusion d'huile NRC type VHS-4 de 1200 l/s munie d'un piège à azote liquide (voir figure II 1).

La chambre peut être isolée de son groupe de pompage par une vanne à tiroir (VAT). Une vanne électropneumatique permet d'isoler la pompe secondaire de la pompe primaire ; enfin une vanne manuelle et un "by-pass" permettent de court-circuiter la pompe secondaire pour pomper en pompage primaire dans la chambre.

La pression en vide primaire est mesurée par des jauges à thermocouple et la pression en vide secondaire par une jauge à ionisation (NRC 840).

Deux écrans en cuivre, refroidis à l'azote liquide et localisés dans l'enceinte au voisinage du trajet des atomes du jet, permettent d'une part d'abaisser encore la pression dans l'enceinte puis ensuite de définir une collimation de jet égale à 100 environ. Ces deux diaphragmes sont maintenus à basse température par l'azote liquide contenu dans le réservoir d'azote liquide représenté sur la figure II 1.

Avec la pompe à diffusion et les diaphragmes refroidis, la pression dans l'enceinte est de l'ordre de 1 à 2×10^{-7} torr.

Toutes les commandes de mouvement (translation ou rotation) des éléments mobiles à l'intérieur de l'enceinte (four, écran mobile, détecteur) se font par l'intermédiaire de soufflets soudés.

A 2. LE FOUR. LES DIAPHRAGMES FROIDS. LE DETECTEUR

Le four est constitué par un bloc de monel, dans lequel une cavité cylindrique de plusieurs cm^3 de volume peut recevoir du rubidium ou du sodium métalliques. L'orifice de remplissage de cette cavité est fermé par un bouchon conique également en monel. Le four peut être chauffé par des enroulements spiralés de fil de tantale glissés dans des tubes d'alumine creux, eux-mêmes glissés dans des trous cylindriques percés dans la masse du four.

Deux thermocouples - l'un situé près de la sortie du four, l'autre près du fond - permettent de contrôler la température. Un système de régulation de température permet de maintenir le four à une température fixe choisie à l'avance.

Nous avons fonctionné à 160° C pour le jet de rubidium et à 300° C pour le jet de sodium, ce qui permet d'obtenir des densités atomiques de l'ordre de 10^8 atomes/cm^3 au niveau de la zone d'interaction.

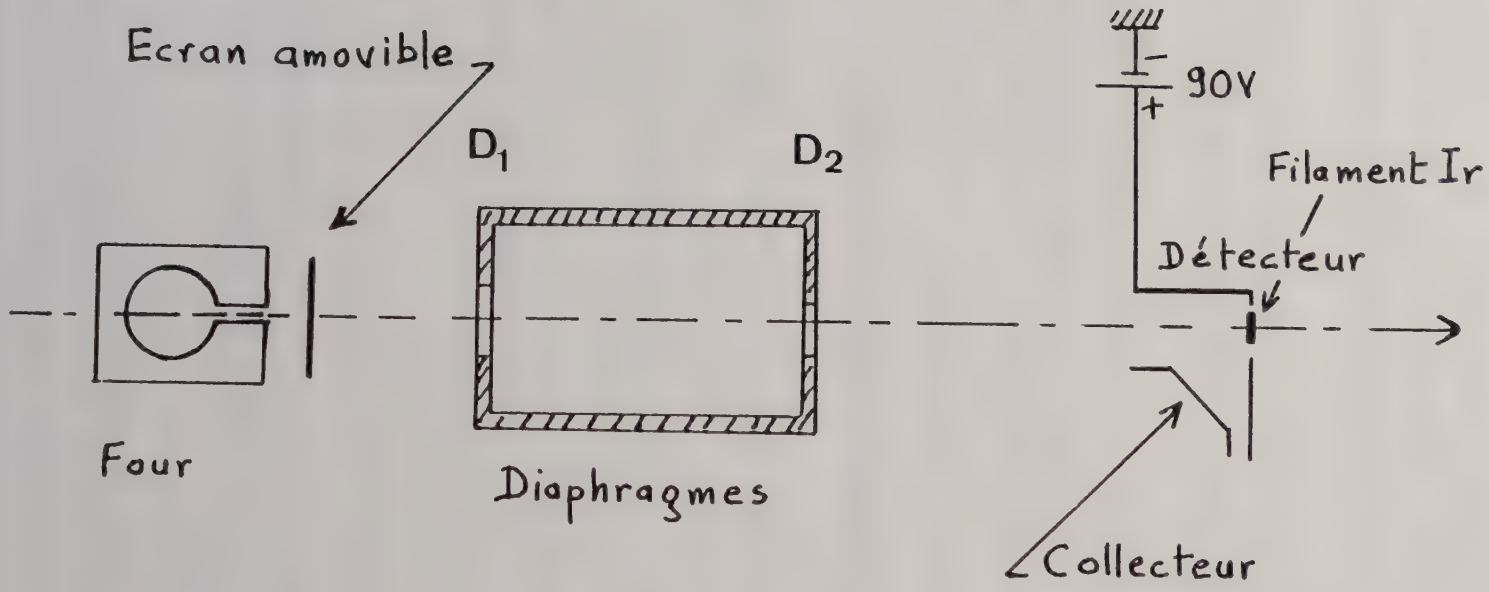


FIGURE II-2 : Le jet atomique.

Un écran mobile, placé devant la sortie du four, permet de couper éventuellement le jet.

Les éléments qui définissent la géométrie du jet atomique sont représentés sur la figure II 2.

Les diaphragmes D_1 et D_2 sont fixes ; ils sont en contact thermique avec le fond du réservoir d'azote liquide de la figure II 1. Ces diaphragmes servent à condenser les atomes de rubidium ou de sodium qui n'ont pas la direction de vitesse convenable.

Le jet atomique est détecté par ionisation de surface d'un ruban d'iridium chauffé au rouge vif par le passage d'un courant de 7 à 8 ampères. On choisit l'iridium, car c'est un métal pour lequel le travail d'extraction W (W = 5,4 eV) est grand devant le potentiel d'ionisation I de la plupart des alcalins (I = 5,12 eV pour Na et I = 4,17 eV pour Rb).

Le ruban d'iridium est plat, d'environ 1 mm de large et 3 cm de long. Ce filament chaud est porté à un potentiel de 90 volts par rapport à une plaque de cuivre dont le potentiel est à peu près zéro volt et qui collecte ainsi les ions émis par le filament (voir figure II 2). Ce collecteur est relié à l'entrée d'un picoampèremètre sur lequel on peut mesurer le courant d'ions, donc l'intensité du jet atomique.

A 3. LA ZONE D'INTERACTION AVEC LA LUMIERE. LA DETECTION DES IONS

Les atomes du jet peuvent être excités par le rayonnement d'un laser ou de deux lasers dans le cas d'une excitation à deux étages ; afin de diminuer fortement l'élargissement Doppler, les faisceaux lumineux sont perpendiculaires au jet atomique.

La région d'interaction avec la lumière est située entre les deux plaques métalliques d'un condensateur plan, dont l'espacement peut varier de 5 à 10 mm.

On peut appliquer aux électrodes un champ électrique continu ou en impulsion ; celui-ci est déclenché, avec un retard τ accordable, par les impulsions électriques de sortie d'une photodiode éclairée par une toute petite partie du faisceau du laser Nd-YAG. Le champ en impulsion peut être appliqué seul et dans ce cas il ionise uniquement les états de Rydberg non perturbés peuplés par l'excitation optique ; mais le plus souvent ce champ en impulsion, d'amplitude suffisamment grande pour ioniser tous les atomes excités, est superposé à un champ continu F sous-critique ; de cette façon on peut étudier le comportement des atomes en présence du champ électrique F . Ces champs, continu ou en impulsion, servent aussi à accélérer les ions formés en direction du détecteur.

Afin de permettre le passage des ions, l'une des armatures du condensateur est munie d'une grille métallique en nickel placée en son centre.

Dans le cas où le champ électrique appliqué doit être parallèle à la direction des faisceaux lasers pour des raisons de choix de polarisation lumineuse, la géométrie de la zone d'interaction est modifiée comme on le verra dans le chapitre IV.

Les ions créés sont collectés par un multiplicateur d'électrons, dont la première dynode est portée à un potentiel négatif élevé (- 3000 volts). Le gain du multiplicateur, qui dépend de cette tension de polarisation, peut être de 10^7 ou 10^8 . Le multiplicateur fournit en sortie, sur une impédance de charge de 50 Ω , des impulsions d'une durée de 5 nanosecondes et d'une amplitude de 100 millivolts.

Les impulsions de sortie du multiplicateur d'électrons sont observées sur l'écran d'un oscilloscope. On peut ainsi observer le temps de vol des ions et leur dispersion, ce qui permet d'ajuster le retard et la largeur de la porte du système de comptage.

Le compteur reçoit les impulsions du détecteur ; ces impulsions sont mises en forme, puis sont comptées pendant une durée réglable (entre 5 et 10 secondes) fixée par une horloge interne du compteur. En sortie du compteur, un convertisseur digital analogique fournit une tension continue proportionnelle au nombre d'ions comptés ; cette tension est ensuite enregistrée sur un enregistreur graphique, tandis qu'une nouvelle séquence de mesure démarre.

Enfin il faut noter que, lorsque le signal d'ions devient intense, le compteur a tendance à saturer : en effet les impulsions délivrées par le détecteur d'ions deviennent de plus en plus serrées et, compte tenu du pouvoir de résolution temporelle limité du compteur, la probabilité de compter toutes les impulsions diminue en conséquence.

Dans ces conditions on est alors amené à utiliser un intégrateur à porte comme système de comptage.

B - LASER MONOMODE PULSE

L'excitation optique des états de Rydberg d'atomes alcalins nécessite un rayonnement lumineux dans le domaine ultra-violet ($\lambda \simeq 3000$ Å). Une étude à très haute résolution de ces états hautement excités ne pourra être menée que si ce rayonnement laser a une très faible largeur spectrale, ce qui permet une excitation sélective, et une forte intensité afin de compenser la faible probabilité de transition vers ces états.

Ces deux propriétés (forte puissance et faible largeur spectrale) n'étant pas généralement compatibles, nous avons été amenés à mettre au point un système laser original.

Pour obtenir un rayonnement à la fois intense et quasi monochromatique, on peut penser à utiliser un oscillateur laser continu monomode amplifié par un ou deux étages amplificateurs pompés par un laser Nd-YAG. Très souvent la puissance de sortie du laser oscillateur est très faible, si bien que cela nécessite une chaine d'amplificateurs de gain très élevé ($\sim 10^5$) qu'il est difficile de réaliser sans éviter d'amplifier la fluorescence ; aussi nous n'avons pas retenu cette solution. La solution que nous avons choisie s'inspire des lasers à injection, qui ont fait l'objet d'un certain nombre d'études approfondies [47,48,49,50].

Aussi, avant d'entreprendre la description de notre montage qui présente quelques avantages par rapport au système à injection, nous donnerons le principe de fonctionnement de ce type de source.

B 1. PRINCIPE DU LASER A INJECTION

Un laser à injection est composé de deux parties :

1°- Un laser L_i de puissance relativement faible (quelques mW), mais d'une grande pureté aussi bien spatiale (mode TEM_{oo}) que spectrale (laser monomode). Ce type de laser peut être soit un laser continu, soit un laser fonctionnant en impulsion.

2°- Un laser L_p de forte puissance (quelques kW) ne comportant généralement pas de sélecteur de modes intracavité, c'est à dire ayant une largeur spectrale relativement grande. Ce laser peut être par exemple un laser fonctionnant en impulsion : laser à colorant pompé par une lampe flash ou par un laser de puissance (laser à azote ou laser Nd - YAG). Il peut bien sûr être rendu monomode par l'adjonction d'un sélecteur de modes, mais au prix d'une perte considérable de puissance, ce qui n'est pas l'effet recherché.

Le domaine de longueur d'onde dans lequel l'oscillateur peut fonctionner doit évidemment contenir la longueur d'onde λ_i d'oscillation du premier laser.

Le faisceau du laser L_i est alors envoyé dans la cavité du laser L_p de telle façon qu'il coincide spatialement avec un de ses modes afin qu'une quantité non négligeable de l'énergie issue du laser L_i se retrouve dans la cavité du laser L_p ; il est nécessaire que la longueur d'onde λ_i corresponde à une longueur d'onde de résonance de cette cavité. Lorsque ces conditions sont réalisées, on dit que l'on a injecté le faisceau du laser L_i dans la cavité du laser L_p .

Si maintenant on branche le mécanisme de pompage du laser L_p , on sait que, dans le cas où il n'y a pas d'injection dans la cavité de L_p , l'oscillation laser se construit simultanément sur l'ensemble des modes de la cavité à partir de l'émission spontanée du milieu actif et par amplifications successives à chaque aller et retour dans la cavité. Dans ces conditions l'évolution de la puissance dans chaque mode, pendant ce régime transitoire, suit une loi exponentielle $P_o(\lambda_n) \exp [\alpha(\lambda_n) t]$, où $P_o(\lambda_n)$ représente la puissance due à l'émission spontanée dans le mode de longueur d'onde λ_n et $\alpha(\lambda_n)$

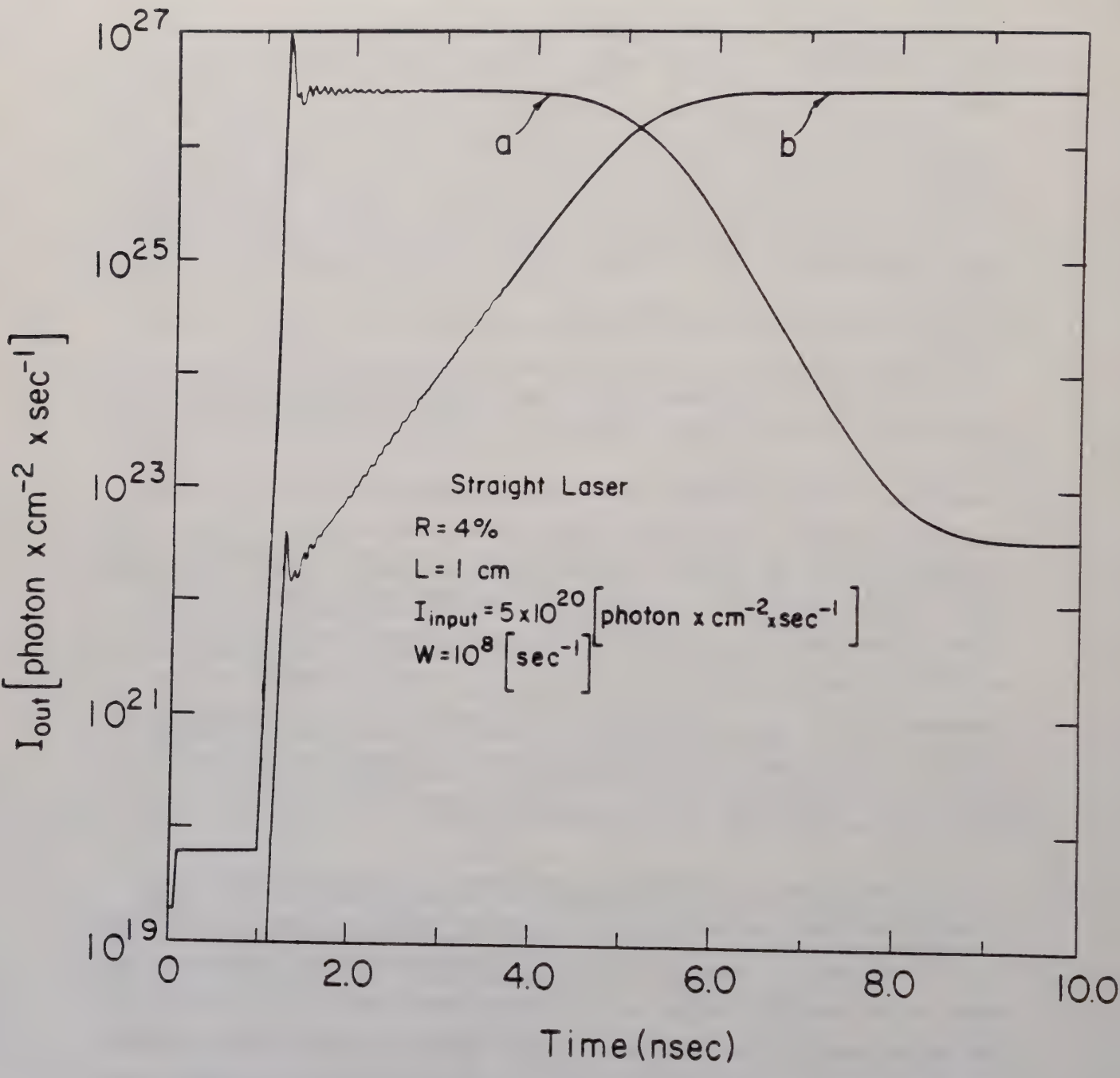


FIGURE II-3

Evolution temporelle des puissances dans les modes λ_i (courbe a) et λ_M (courbe b)

le facteur d'amplification à la même longueur d'onde.

Le mode possédant le plus fort gain sature la courbe de gain du milieu actif avant tous les autres modes. La courbe de gain chute alors uniformément sur l'ensemble de ces modes, qui ne peuvent plus ainsi osciller. Il y a apparition d'effet laser sur la longueur d'onde λ_M correspondant au maximum de la courbe de gain.

Examinons maintenant le cas où un mode de longueur d'onde λ_i et de puissance $P_o(\lambda_i)$ est injecté dans la cavité du laser L_p. On a alors dans le mode de longueur d'onde λ_i une densité de photons beaucoup plus grande que la densité de photons d'émission spontanée dans les modes adjacents de longueur d'onde λ_n, c'est à dire que $P_o(\lambda_i) \gg P_o(\lambda_n)$.

L'oscillation sur ce mode priviligié démarre sur un niveau beaucoup plus élevé que l'oscillation sur les autres modes. Moyennant certaines conditions qui seront précisées, ce mode priviligié arrivera à saturer le milieu amplificateur avant tous les autres modes, qui verront alors leur gain chuter très fortement. L'oscillation sur ces modes sera ainsi brutalement freinée dans son évolution vers l'effet laser, mais continuera néanmoins de se construire lentement.

Cet effet est bien représenté sur les courbes de la figure II 3 qui montrent l'évolution temporelle de la puissance dans le mode de longueur d'onde λ_i (courbe a) et de la puissance dans le mode de longueur d'onde λ_M (courbe b) pour lequel le gain $G(\lambda_M)$ est maximal. Comme à saturation le gain $G_s(\lambda_M)$ est supérieur au $G_s(\lambda_i)$, défini par la relation $G_s(\lambda_i)\,P = 1$ où P caractérise les pertes dans la cavité, l'oscillation sur la longueur d'onde λ_M continue de se construire ($G_s(\lambda_M)\,P > 1$).

Lorsque la puissance $P(\lambda_M)$ dans ce mode atteint un niveau suffisant ($P(\lambda_M) \sim P(\lambda_i)$), il entre alors en compétition avec le mode oscillant sur la longueur d'onde λ_i qui cesse d'osciller. On

voit donc apparaitre deux régimes : le premier, où seul le mode injecté (λ_i) oscille, et le second, où le laser pulsé fonctionne seul à la longueur d'onde λ_M (l'injection ne joue plus aucun rôle).

La durée du premier régime dépend de la vitesse avec laquelle l'oscillation à λ_M continue de se construire ; elle dépend du produit

$$G_s (\lambda_M) P = \frac{G_s (\lambda_M)}{G_s (\lambda_i)} > 1$$

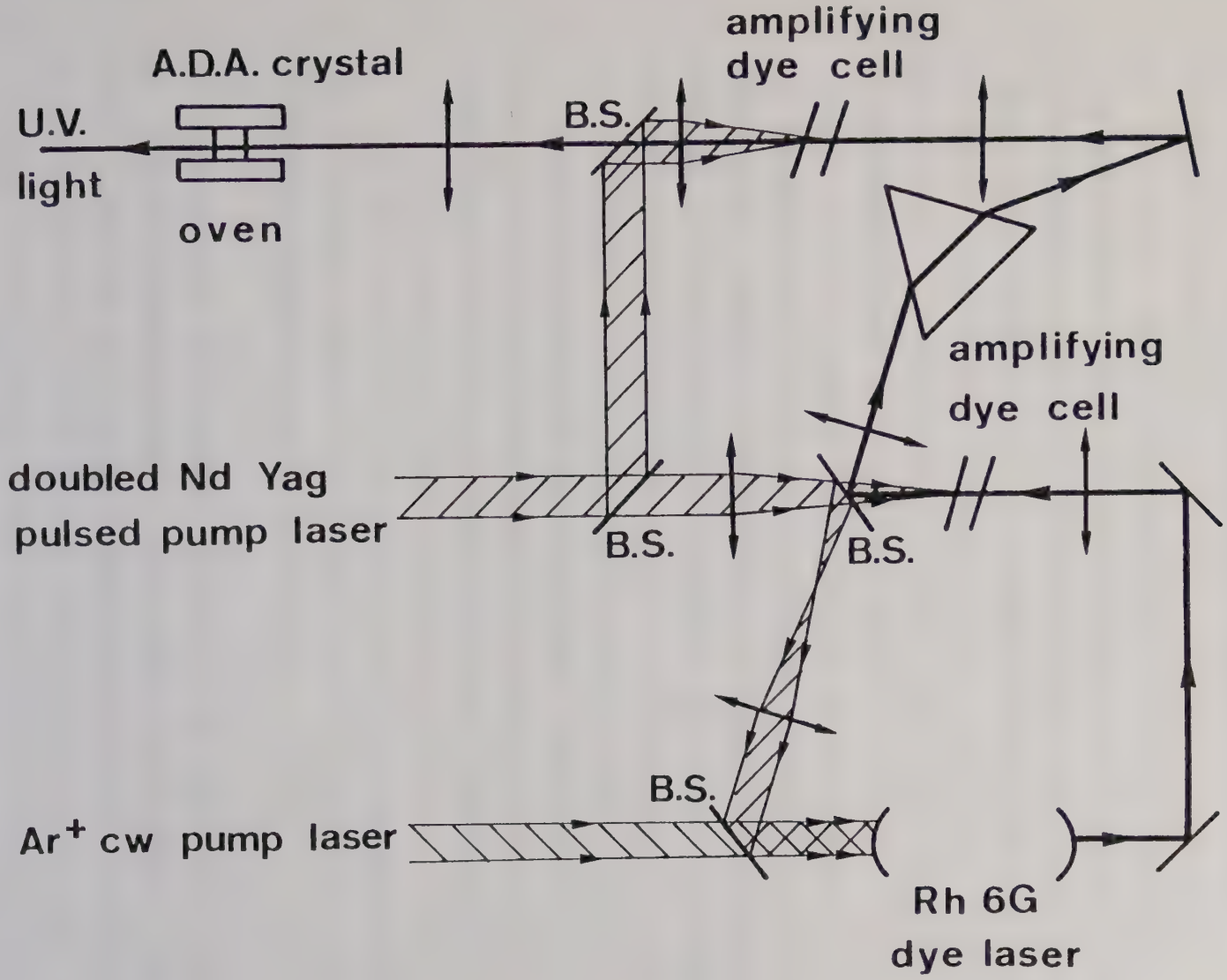
La durée du régime de fonctionnement en injection est d'autant plus courte que $G_s (\lambda_M)$ est plus grand que $G_s (\lambda_i)$, c'est à dire que λ_M est plus éloigné de λ_i .

Signalons que la durée de ce régime dépend évidemment de la puissance injectée $P (\lambda_i)$ dans la cavité du laser L_p . Plus cette puissance est grande et plus longue sera la durée de ce régime.

En conclusion on peut dire que l'effet de l'injection dans un tel système laser se traduit par l'existence d'un régime transitoire intéressant, au cours duquel l'ensemble, constitué par les deux lasers L_i et L_p , délivre un rayonnement de puissance et de grande pureté spectrale.

Toutefois, si la durée de l'impulsion de pompage du laser de puissance L_p est suffisamment grande (beaucoup plus grande que la durée du régime d'oscillation sur la longueur d'onde λ_i), on finit toujours par atteindre, comme régime final, le régime où la cavité du laser L_p oscille sur la longueur d'onde λ_M .

Afin de conserver la pureté spectrale du mode injecté, on a donc intérêt à ne pas utiliser des impulsions de pompage de durées trop longues.



B.S. : beam separator

FIGURE II-4

Schéma général du laser monomode pulsé.

B 2. REALISATION D'UN LASER MONOMODE PULSE

B 2.1. Description du laser monomode pulsé

Nous venons d'exposer le fonctionnement d'un laser à injection dans lequel le rayonnement continu et monomode (faible puissance et grande pureté spectrale) ainsi que le rayonnement pulsé (forte puissance et grande largeur spectrale) sont réalisés dans des cavités lasers différentes.

En fait ce dispositif ne peut fonctionner que dans la mesure où la cavité du laser pulsé est accordée sur la longueur d'onde du laser continu. Un tel accord est possible : il suffit pour cela de moduler la longueur de la cavité pulsée et de déclencher les impulsions de pompage à l'instant où la cavité est accordée à la longueur d'onde d'injection.

Une autre solution, proposée par S. Liberman et J. Pinard [51], consiste à utiliser la même cavité laser pour réaliser simultanément les fonctions pureté spectrale et forte puissance. Cette solution a l'avantage de supprimer le problème de mise en accord de la cavité laser de puissance et celui du choix de l'instant de déclenchement de l'impulsion de pompage.

La figure II 4 montre les différents éléments du montage utilisé.

Le milieu actif est une solution de rhodamine 590 qui circule sous forme d'un jet laminaire afin de ne pas être détériorée par les faisceaux de pompe. Ce colorant est soumis à deux faisceaux pompe.

L'un, continu, est produit par un laser à argon ionisé (Spectra Physics modèle 370) ; sa longueur d'onde est $\lambda = 514{,}5$ nm et sa puissance 1 W .

L'autre, pulsé, est fourni par un laser à néodyme Nd-YAG (Chromatix Model 1000) dont la fréquence est doublée par un cristal non

linéaire placé dans la cavité ; sa longueur d'onde est $\lambda = 532$ nm , la durée des impulsions est de 120 ns environ, leur puissance crête de l'ordre de 5 kW , et leur taux de répétition est de 40 Hz (puissance moyenne 5 mW).

Le principe de fonctionnement est le suivant : l'excitation par le laser à argon ionisé donne lieu à une oscillation continue et monomode (mode λ_i) ; si l'on supprime le pompage continu (laser Ar^+) et que l'on excite la cavité avec le laser Nd - YAG , l'oscillation du laser à colorant pulsé a lieu alors sur plusieurs modes (mode λ_n) très voisins du mode continu λ_i .

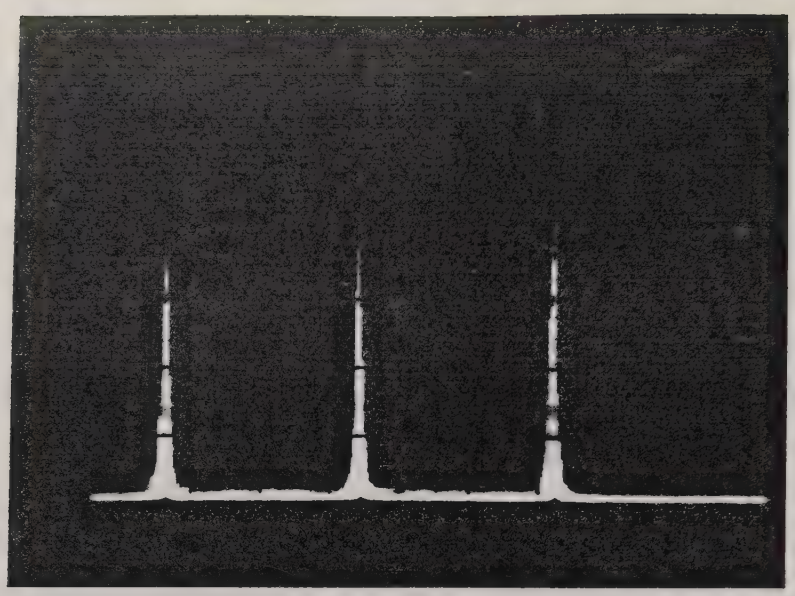
Maintenant, si l'on soumet la cavité aux deux faisceaux de pompage, alors l'oscillation qui prend naissance sous l'effet des impulsions du laser Nd - YAG se forme plutôt sur le mode λ_i oscillant en continu que sur les autres modes, pour lesquels elle démarre sur le bruit.

Ainsi sous l'action du double pompage, l'oscillation du laser à colorant comporte un rayonnement continu à la longueur d'onde λ_i , auquel se superposent des impulsions intenses à la même longueur d'onde.

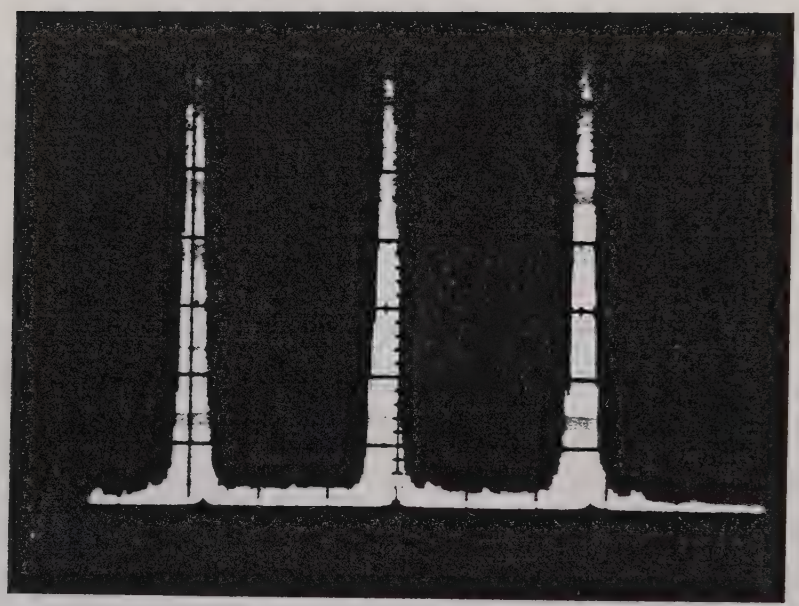
Une telle situation ne se maintient que si la puissance de l'impulsion de pompage n'est pas trop élevée, autrement l'effet laser finit par se produire sur plusieurs modes.

Dans le cas d'un pompage fort on observe un élargissement spectral de l'impulsion laser ainsi qu'un déplacement de la fréquence d'oscillation du mode. En effet un tel pompage modifie l'indice de réfraction du milieu colorant, c'est à dire la longueur optique de la cavité laser.

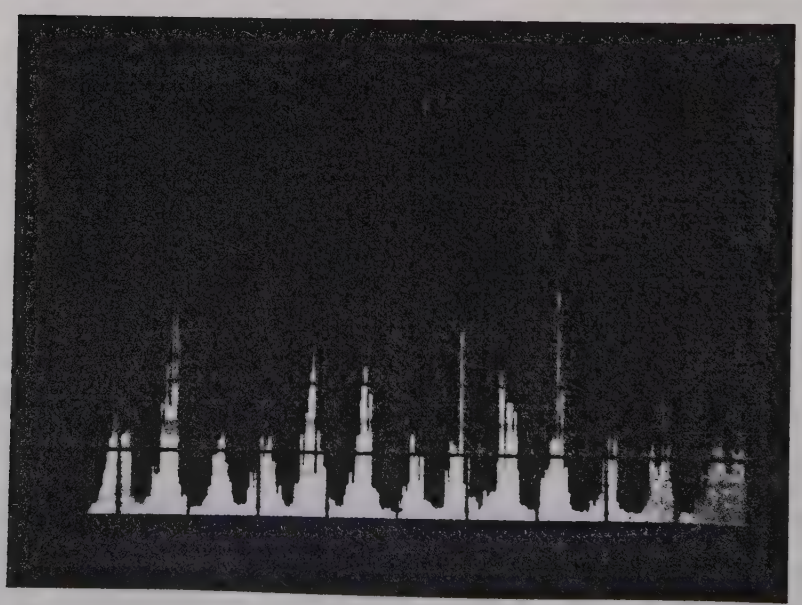
La figure (II 5 a,b) représente des oscillogrammes obtenus pour deux valeurs différentes de la puissance de pompage. Dans le cas d'un pompage modéré (figure 5 a) l'oscillation laser se fait exactement sur la fréquence du mode continu, tandis que dans le cas d'un pompage fort (figure 5 b) on peut observer un élargissement spectral de l'impulsion



a



b



c

Figure II-5 : Signaux obtenus à l'oscilloscope de l'analyseur de mode dans différents cas d'excitation du laser.

laser ainsi qu'un déplacement de la fréquence d'oscillation. L'efficacité de l'injection d'une partie continue dans la sélection de modes peut se voir en comparant les figures 5 a et 5 b à la figure II 5 c qui représente uniquement un fonctionnement du laser en régime pulsé.

Enfin il faut souligner que si la durée de l'impulsion de pompage est trop longue vis à vis de la durée du fonctionnement monomode du laser, celui-ci finira par osciller simultanément sur plusieurs fréquences (fonctionnement multimode).

Pour cette raison, seule une partie (de l'ordre de 10% , soit 500 W) du faisceau fourni par le laser Nd - YAG doublé est utilisée dans la cavité ; l'autre partie est séparée, par une lame semi-transparente à 532 nm , en deux faisceaux qui servent chacun à pomper un colorant (rhodamine 610) placé dans une cuve sans circulation.

Dans ces conditions de pompage, la cavité laser délivre des impulsions dont la puissance crête est de l'ordre du watt. Cette puissance est encore trop faible pour réaliser un doublage en fréquence efficace ; mais elle est suffisante pour être amplifiée avec peu de bruit.

C'est ainsi que ce faisceau traverse successivement deux cellules à colorant placées en série et pompées par les faisceaux fournis par le même laser Nd - YAG (voir figure II 4). Pour cela on utilise la configuration où le faisceau à amplifier est colinéaire, mais de sens de propagation contraire au faisceau pompe.

L'amplification est certainement plus grande dans cette configuration que dans celle où les deux faisceaux se propagent dans le même sens. En effet l'intensité du faisceau à amplifier croit en même temps qu'il se propage, parce que l'énergie déposée dans le milieu amplificateur par le faisceau pompe augmente dans le sens de propagation du faisceau à amplifier, alors qu'elle décroit dans l'autre configuration.

Le gain en puissance de chaque étage amplificateur est de l'ordre de 30 . Pour éviter d'amplifier la fluorescence d'une cuve par l'autre, on utilise un train de prismes pour découpler les deux amplificateurs.

De la même manière on supprime le couplage optique entre le laser continu et les étages d'amplification en disposant, à la sortie du laser continu, un polariseur suivi d'une lame quart d'onde (isolateur optique) ; en effet un tel couplage entraine aisément l'oscillation laser entre le miroir de sortie de la cavité laser et toute surface réfléchissante placée sur le trajet du faisceau et notamment la face d'entrée du cristal doubleur sur lequel est focalisé le faisceau laser.

Après cette double amplification, on obtient des impulsions dont la puissance crête est de l'ordre de 1 kW ; dans de telles conditions le doublage en fréquence se fait avec un rendement convenable (taux de conversion $\sim 10\%$).

B 2.2. Le doublage en fréquence

Le doublage en fréquence est réalisé au moyen d'un cristal d'A.D.A. (arseniate d'ammonium dihydrogéné) se trouvant à l'extérieur de la cavité laser. Pour obtenir une intensité notable à la fréquence 2ν , il faut réaliser la condition d'accord de phase :

$$n^{(2\nu)} = n^{(\nu)}$$

où $n^{(2\nu)}$ et $n^{(\nu)}$ désignent les indices du milieu aux fréquences 2ν et ν . Pour le cristal d'A.D.A., la condition d'accord de phase est réalisée en faisant varier sa température de 50°C à 70°C .

La focalisation du faisceau incident, de puissance crête de l'ordre de 1 kW , dans le cristal permet d'obtenir des taux de génération de puissance U.V de l'ordre de 10% . On obtient ainsi des impulsions U.V de durée 60 nanosecondes et dont la puissance crête est de l'ordre de quelques dizaines de watts (0,1 mW en moyenne pour un taux de répétition de 40 Hz).

B 2.3. Balayage en fréquence du laser continu

La cavité du laser à colorant comporte comme éléments sélecteurs un prisme et un étalon de Fabry-Pérot. Par déplacement d'un miroir fermant la cavité, on peut faire varier continuement la fréquence d'oscillation du laser ; mais la plage de balayage est uniquement de l'ordre de l'intervalle spectral libre de la cavité ($\Delta\nu_{CAV} \simeq 400$ MHz).

Pour obtenir un balayage continu sur un grand domaine de fréquence, le pic de transmission de l'étalon doit suivre continuement le mode de la cavité laser quand celui-ci se déplace, ce qui est réalisé à l'aide d'un asservissement.

On impose une modulation d'amplitude X_m ($X_m \ll \lambda$) et de fréquence f_m ($f_m \simeq 1$ kHz) à un des miroirs du Fabry-Pérot ; comme la fréquence du pic de transmission de l'étalon est modulée, il en résulte que la puissance P émise par le mode oscillant de fréquence ν_o est également modulée à la fréquence f_m. Une détection synchrone du signal modulé permet d'obtenir un signal d'erreur qui est appliqué en contre-réaction sur la céramique de façon à augmenter ou diminuer l'épaisseur de l'étalon dans le sens conduisant au maximum de puissance P.

Quant au balayage de la fréquence du mode oscillant de la cavité, il est réalisé en appliquant une tension électrique à la céramique du miroir de la cavité laser.

En effet, dans une cavité quelconque de longueur L et oscillant sur la fréquence ν, le déplacement de fréquence $\Delta\nu$ associé à la variation ΔL de la longueur L vaut : $\Delta\nu = -\nu \frac{\Delta L}{L}$; pour avoir un balayage continu on doit avoir $\Delta\nu_{CAV} = \Delta\nu_{ETA}$.

Aussi pour synchroniser le déplacement du mode laser de la cavité et du pic de transmission de l'étalon, on doit avoir, compte tenu des caractéristiques de l'étalon et de la cavité laser, $\Delta L_{CAV} = 180\ \Delta L_{ETA}$.

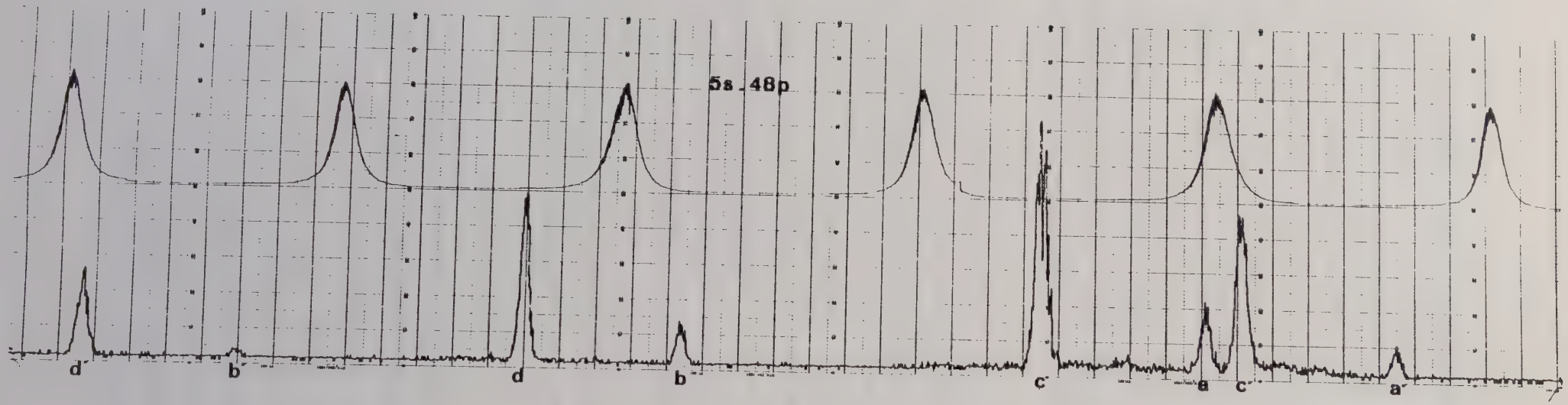


FIGURE II-6

Structure de la transition 5s → 48p du rubidium naturel.
L'échelle en énergie est donnée par les pics de transmission d'un Fabry-Perot espacés de 1500 MHz dans le domaine U.V. . Les 8 composantes de la structure sont clairement résolues (a b c d composantes de l'isotope 85 et a' b' c' d' composantes de l'isotope 87).

Pour avoir un déplacement $\Delta\nu \simeq 30$ GHz vers $\lambda \simeq 6000$ Å, il faut un allongement de l'étalon $\Delta L_{ETA} \simeq 0,15\ \mu$ soit un allongement de la cavité $\Delta L_{CAV} \simeq 25\ \mu$; de tels allongements sont hors des limites de la céramique piézoélectrique de la cavité.

Comme l'allongement maximal de la cavité est $\Delta L_{Max} \simeq 1\ \mu$, le déplacement maximal du mode laser est $\Delta\nu_{Max} \simeq 1200$ MHz .

Ainsi les grands intervalles de fréquence ne pourront pas être balayés continuement, mais uniquement par tranches ; on fait subir au miroir de la cavité laser un déplacement en dents de scie, dont l'amplitude maximale est telle que la fréquence du mode laser se déplace de presque un nombre entier d'intervalles $\Delta\nu_{CAV}$. Pendant le retour très rapide du miroir à sa position initiale, l'épaisseur de l'étalon reste constante; le laser effectue alors un saut de mode et sa fréquence d'oscillation est très proche de la valeur atteinte quand l'amplitude de la dent de scie était maximale. L'ajustement de cette amplitude maximale permet d'obtenir pour les deux positions du miroir un écart en fréquence inférieur à 50 MHz.

De la sorte on parvient à faire varier de façon presque continue la fréquence d'oscillation du laser sur un intervalle de plus de 90 GHz dans le domaine visible, soit 180 GHz dans le domaine U.V.

Le contrôle du balayage en fréquence se fait en enregistrant les pics de transmission d'un Fabry-Pérot confocal de 10 cm de long éclairé par la partie continue de l'oscillation.

B 2.4. Performances et conclusion

La figure II 6 montre un enregistrement de la transition 5s - 48p du rubidium naturel. On peut voir que les 8 composantes de la structure, dont les largeurs spectrales sont inférieures à 60 MHz, sont clairement résolues ; elles correspondent respectivement aux iso-

topes de masse 85 (composantes a b c d) et de masse 87 (composantes a' b' c' d').

Les performances de ce laser monomode pulsé sont ainsi comparables à celles d'un laser monomode continu ; en effet la largeur spectrale du mode oscillant dans le domaine U.V peut être inférieure à 60 MHz dans le cas d'un pompage modéré et la fréquence d'oscillation peut être balayée continuement sur une plage de quelques cm^{-1}.

L'étude à très haute résolution des états atomiques très excités est rendue maintenant possible grâce à ce laser oscillant dans le domaine ultra violet.

En fait il existe d'autres moyens pour engendrer un rayonnement ultra violet ; on peut par exemple, comme dans le cas des lasers en anneau, placer un élément non linéaire à l'intérieur de la cavité laser dans laquelle règne une très grande densité d'énergie et ainsi obtenir un doublage de la fréquence en régime continu.

Toutefois ce dispositif présente le grand inconvénient de ne pas séparer les fonctions de balayage et de doublage en fréquence. La condition d'accord de phase se détériore en général lors d'un balayage en fréquence de l'ordre de 30 GHz . De plus, dans le cas de notre cavité laser à deux miroirs, il aurait fallu introduire une optique de focalisation supplémentaire de façon à placer le cristal doubleur à l'endroit où existe la plus grande densité d'énergie.

C'est pour toutes ces raisons que nous avons préféré réaliser le doublage en fréquence à l'extérieur de la cavité laser.

Chapitre III

ETUDE AU VOISINAGE DE LA LIMITE D'IONISATION

CLASSIQUE $E_c = -2\sqrt{F}$

Ce chapitre est entièrement consacré à l'étude du comportement de l'atome de rubidium en présence d'un champ électrique et au voisinage de la limite d'ionisation classique $E = E_c$.

Le choix de la région spectrale $E = E_c$ présente un double intérêt.

Tout d'abord, près de $E = E_c$, le problème de l'ionisation d'un atome quelconque prend une forme beaucoup plus simple, parce qu'il se ramène à l'étude de l'interaction de certains niveaux stables avec un seul continuum caractérisé par le nombre quantique parabolique $n_1 = 0$. L'étude expérimentale de ce domaine spectral devrait nous confirmer l'existence des deux mécanismes de photoionisation signalés dans le précédent chapitre.

Enfin l'étude de la région $E = E_c$ est intéressante dans la mesure où les calculs de perturbations, appliqués au modèle hydrogénoïde, pourront être menés dans ce domaine d'énergie. En effet dans l'équation du mouvement suivant la coordonnée ξ (coordonnées paraboliques), l'énergie d'interaction $F\xi$ de l'électron avec le champ appliqué peut être considérée comme négligeable, pour la valeur $F \sim F_c = \frac{E^2}{4}$, devant l'énergie potentielle Z_1/ξ de l'électron.

Le schéma de principe d'une expérience type d'effet Stark sur les états de Rydberg d'atomes alcalins est représenté sur la figure III 1 ; les atomes sont d'abord portés, grâce à l'excitation sélective et efficace du rayonnement laser, dans des états hautement excités puis ensuite détectés par ionisation dans un champ électrique.

Beaucoup d'expériences effectuées sur ces états de Rydberg ont porté principalement sur la détermination du champ critique d'ionisation;

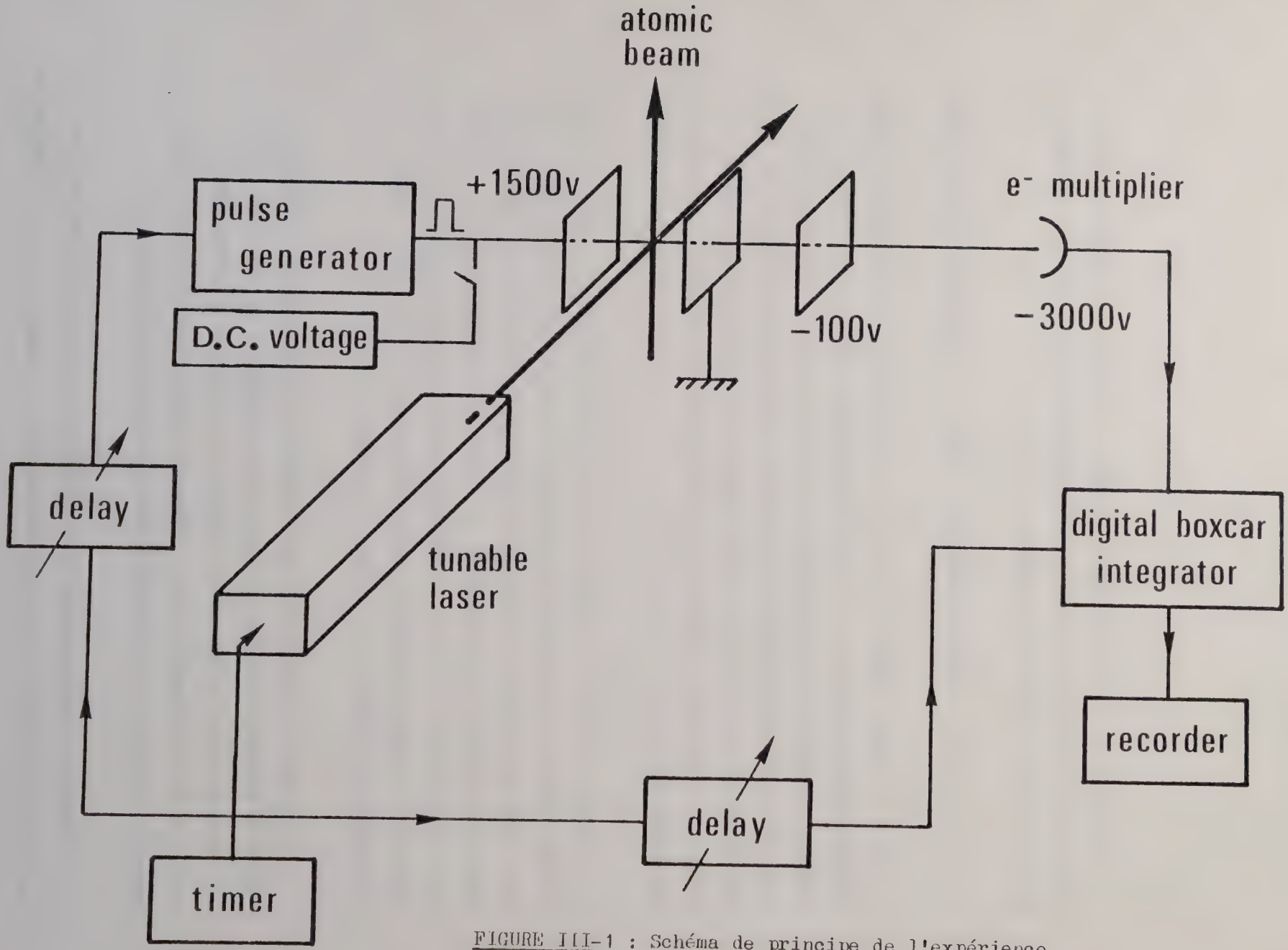


FIGURE III-1 : Schéma de principe de l'expérience.

il est à noter cependant que toutes ces expériences ont été faites à basse et moyenne résolution ($\Delta\nu \sim 0{,}1$ à $0{,}5\ cm^{-1}$) [41,52,53,54,55].

Comme nous l'avons mentionné dans le chapitre I, notre objectif était d'abord de bien comprendre le mécanisme d'ionisation d'un atome alcalin excité en présence d'un champ électrique statique.

Aussi nous avons pensé que seuls les techniques de très haute résolution pouvaient nous permettre de mieux cerner les mécanismes responsables de l'ionisation et ainsi d'apporter des réponses aux nombreuses questions qui sont posées.

Ce type d'expérience, rendu possible grâce à notre laser monomode pulsé, a été fait uniquement sur un jet atomique de rubidium naturel, en raison du domaine de fréquence dans lequel le laser peut être accordé.

Les atomes de rubidium sont excités en présence d'un champ électrique par un seul photon qui les porte de l'état fondamental $^2S_{\frac{1}{2}}$ $m_\ell = 0$ à un état $m_\ell = 0$ ou $|m_\ell| = 1$, selon que le vecteur polarisation de la lumière excitatrice est parallèle ou perpendiculaire à la direction du champ électrique appliqué (excitation Π ou σ).

A - DETERMINATION EXPERIMENTALE DE LA LIMITE D'IONISATION CLASSIQUE

Toutes les expériences de détermination de seuils d'ionisation effectuées jusqu'à présent ont consisté à porter d'abord l'atome dans un état excité $| n\ell\ m_\ell \rangle$ au moyen d'un ou plusieurs photons, puis d'appliquer quelques microsecondes après, c'est à dire de l'ordre d'une fraction de la durée de vie de l'état excité, une impulsion de champ électrique suffisamment intense pour ioniser l'atome.

On connait alors, outre l'énergie en champ nul de l'état excité $E_o(n\ell) = -\frac{1}{2n^{*2}}$, le champ électrique d'ionisation F_c .

On a remarqué que dans certains cas, tels que celui du rubidium [56], la loi $F_c = \frac{1}{16n^{*4}}$ était très bien vérifiée pour les niveaux nP étudiés ($n > 30$) , alors que dans beaucoup d'autres expériences la quantité $F_c \times 16n^{*4}$ restait à peu près constante, mais différait de l'unité de façon assez significative (+ 10% environ pour les états D du sodium [52, 41]); en fait ce désaccord n'est pas surprenant en ce sens qu'il aurait fallu prendre comme énergie de l'atome non pas celle en champ nul $E_{n\ell}$, mais son énergie $W_{n\ell}$ en champ ionisant [57, 58] .

Dans d'autres expériences on a observé sur certains états $n\ell$ des seuils d'ionisation multiples, dont le nombre correspondait en général au nombre de valeurs possibles de $|m_\ell|$ [41, 59] ; on a également observé des seuils multiples pour des états non dégénérés, tels les états nD $|m_\ell|=2$ et nS du sodium pour $18 < n < 36$ [41, 57, 58] .

Il apparaît ainsi que la méthode d'ionisation par champ électrique pulsé ne permet pas de déterminer avec précision l'énergie d'ionisation

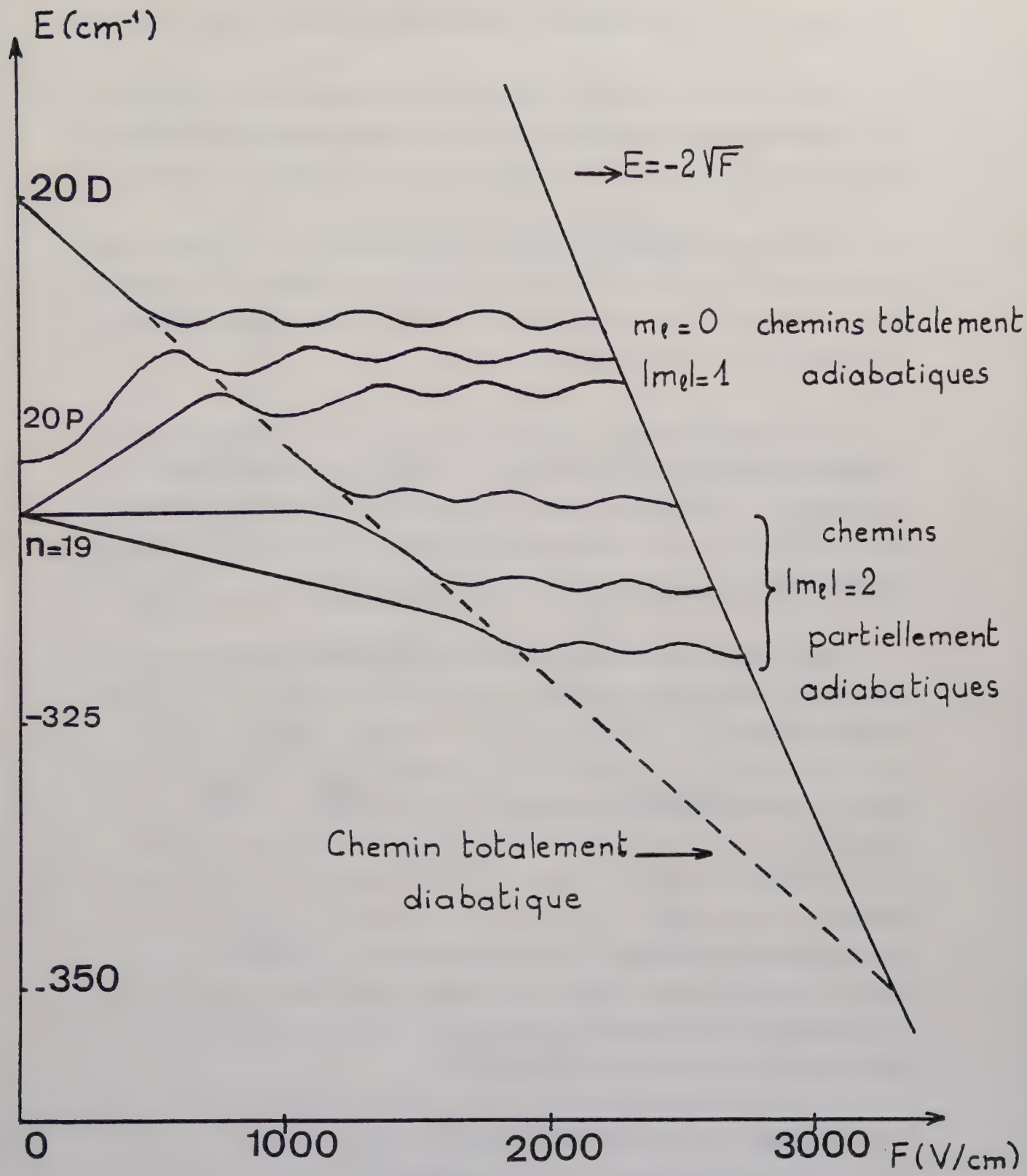


FIGURE III-2

Chemins diabatique et adiabatiques suivis par l'atome de sodium dans l'état 20D quand le champ croît de la valeur zéro à la valeur critique F_c

de l'atome et que de nombreux problèmes vont perturber toutes nos mesures.

Pour illustrer ce fait la figure III 2 montre dans le cas du niveau 20D du sodium les divers niveaux d'énergie suivis par l'atome, quand le champ électrique F passe de zéro à la valeur critique F_c [57].

Elle montre les multiples façons dont un atome initialement porté dans un état $| n, \ell, |m_\ell| \rangle$ peut être ionisé compte tenu du caractère soit diabatique, soit adiabatique de tous les croisements lors de l'application du champ électrique.

Dans le cas des états $m_\ell = 0$ et $|m_\ell| = 1$, on peut noter que l'énergie critique W_i d'ionisation est égale approximativement à l'énergie E_i à laquelle a lieu l'intersection entre les multiplicités $n = 19$ et $n = 20$ (les multiciplicités $n = 19$ et $n = 20$ se croisent pour $F_i \simeq 600$ V/cm et $E_i \simeq - 290$ cm^{-1}) .

L'atome suit donc à partir de $F = F_i$ un niveau d'énergie dont la valeur est pratiquement constante jusqu'à l'ionisation, parce que les niveaux d'énergie $m_\ell = 0$ ou $|m_\ell| = 1$ associés aux multiplicités $n = 19$ et $n = 20$ ne peuvent pas se croiser compte-tenu de leur caractère non hydrogénoïde (croisement adiabatique).

En revanche comme les états $|m_\ell| = 2$ sont beaucoup plus hydrogénoïdes que les états $|m_\ell| = 0$ et 1 , l'atome a une probabilité non négligeable de franchir les croisements de façon diabatique. Il peut se trouver alors en champ fort, juste avant de s'ioniser dans un ou plusieurs états d'énergies différentes, ce qui explique ainsi la multiplicité des seuils d'ionisation.

On comprend alors pourquoi la loi $F_c = \frac{1}{16n^{*4}}$ était bien vérifiée dans le cas des niveaux nP du rubidium : en effet l'énergie en champ nul d'un niveau nP correspond approximativement à l'énergie E_i à laquelle a lieu l'intersection entre les multiplicités (n - 2)

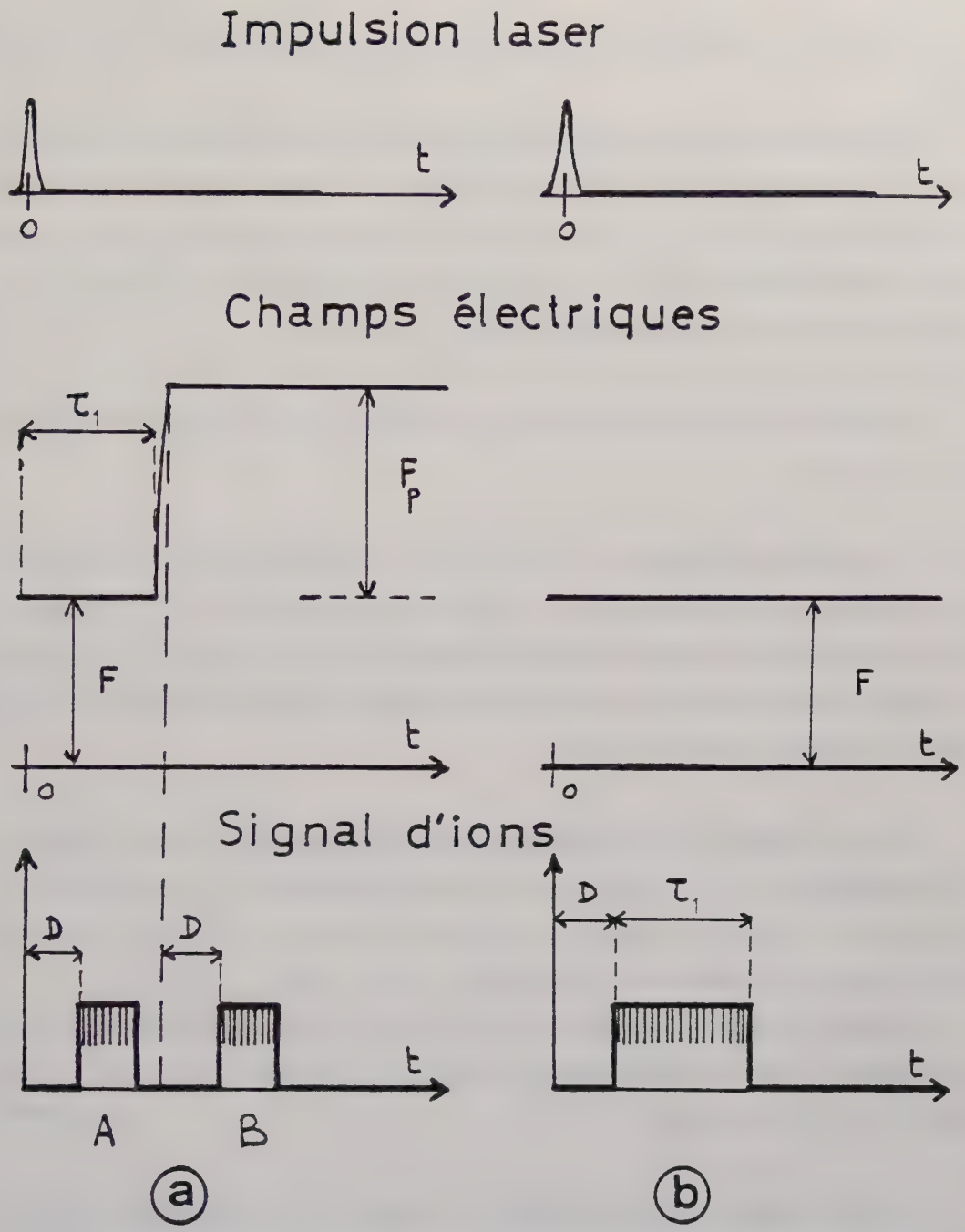


FIGURE III-3

Dépendance en temps du champ électrique pulsé et du système de comptage à porte pour les deux méthodes de détection utilisées.

et (n - 3) ($E_{18P} = -466\ cm^{-1}$ et $E_i = -462\ cm^{-1}$) .

Compte tenu de ces interactions entre les différentes multiplicités, la vitesse d'ionisation de certains niveaux Stark peut, comme on le verra par la suite, ne pas croître de façon monotone avec le champ électrique, mais prendre localement des valeurs très élevées pour lesquelles l'atome est totalement ionisé [44] .

Il est difficile de définir dans ce cas là un champ critique d'ionisation.

Aussi pour s'affranchir de tous les problèmes liés au caractère dynamique du phénomène d'ionisation en champ pulsé, il est préférable d'exciter l'atome en présence d'un champ statique F ; un balayage en énergie du rayonnement excitateur permet alors de porter l'atome dans les différents niveaux Stark.

Dans le cas où ces niveaux Stark sont stables, il est nécessaire de superposer à F , mais avec un certain retard τ_1 sur l'impulsion de lumière laser, un créneau de champ électrique F_p assez intense pour détecter toutes ces résonances Stark (figure III 3a) ; la porte du compteur (temps d'ouverture 1 à 2 µs) est placée avec un retard réglable D sur le début du champ pulsé de façon à tenir compte du temps de vol des ions.

On ne compte ainsi que les ions produits par les atomes dont la vitesse d'ionisation Γ_I dans le champ F est inférieure à τ_1^{-1} .

Lors d'un balayage vers les grandes fréquences, les vitesses d'ionisation des différents niveaux Stark augmentent (les niveaux deviennent de moins en moins stables) jusqu'à devenir toutes supérieures à τ_1^{-1} , ce qui signifie que tous les atomes excités ont eu le temps de s'ioniser dans le champ F avant que le champ pulsé soit appliqué.

En effet l'expérience montre bien que les ions arrivent d'abord dans la porte du compteur (cas B), puis pour une certaine fréquence ou

énergie se mettent à arriver avant la porte du compteur (cas A).

La détermination de la valeur exacte de cette énergie se fait de la façon suivante :

- connaissant approximativement l'énergie critique associée au champ continu F ($E_c \simeq -2\sqrt{F}$) , on effectue grâce à un champ pulsé retardé sur l'impulsion laser un enregistrement sans champ continu de la structure du niveau nP dont l'énergie est immédiatement inférieure à E_c .

- Une fois cette structure enregistrée, on applique alors le champ continu F auquel est toujours superposé le champ pulsé F_p tout en continuant le balayage de la fréquence du laser jusqu'à atteindre l'énergie pour laquelle les ions n'arrivent plus dans la porte du compteur (cas A).

Un système de franges de référence nous permet de déterminer de façon précise la valeur de cette énergie connaissant celle du niveau nP enregistré [60] .

On a remarqué que le fait de varier le retard τ dans la plage (0,2 µs - 1 µs) n'avait pas d'incidence appréciable sur la valeur de cette énergie.

On peut imaginer un autre type d'expériences dans lesquelles on détecte les niveaux Stark instables ; il suffit alors d'exciter les atomes en présence du champ statique F seul (figure III 3b).

La porte du compteur, dont le temps d'ouverture est précisément égal à τ_1, est placée avec un retard réglable D sur le début de l'impulsion laser de façon à tenir compte du temps de vol des ions ; on ne compte cette fois-ci que les ions produits par les atomes dont la vitesse d'ionisation Γ_I dans le champ F est supérieure à τ_1^{-1} .

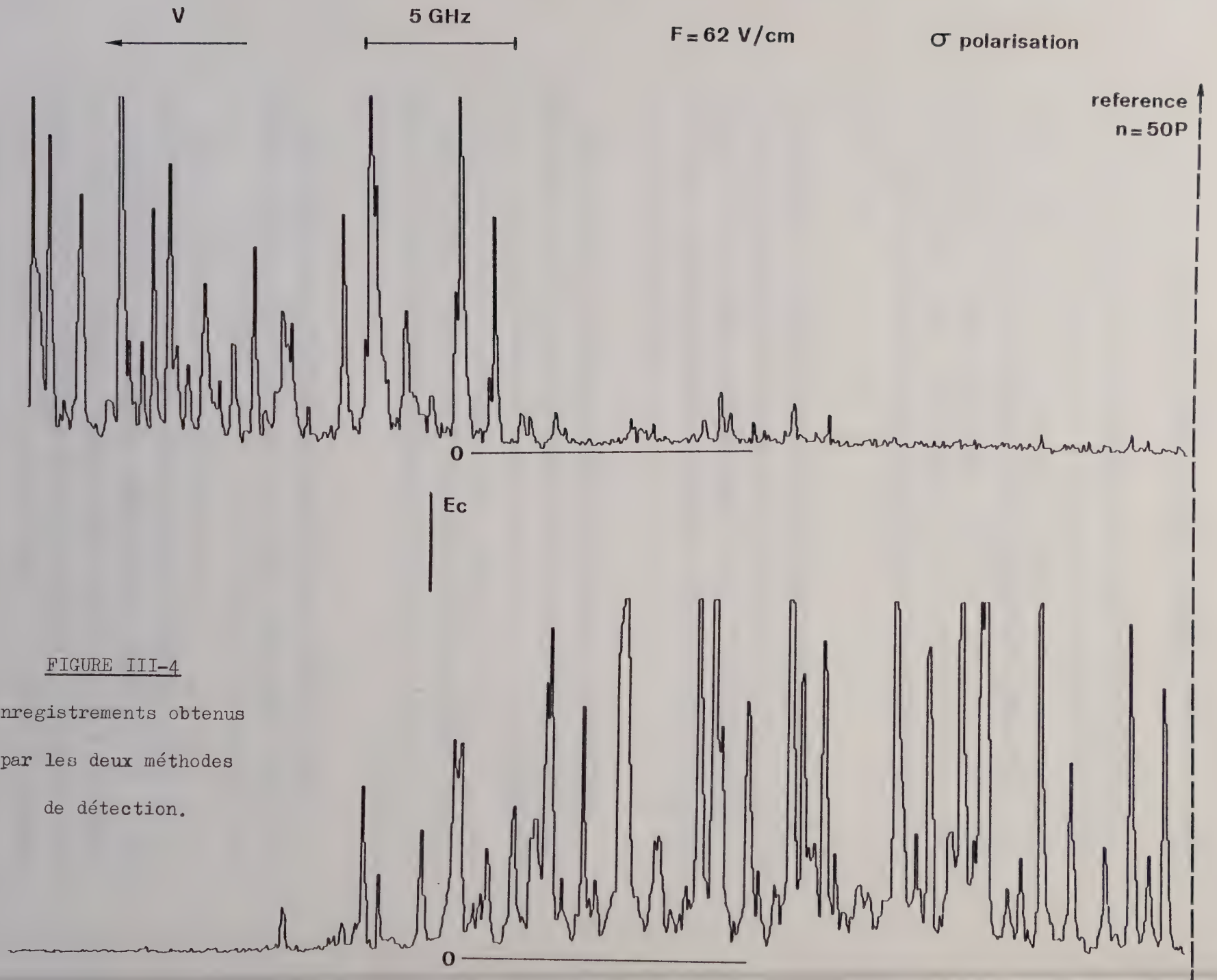


FIGURE III-4

Enregistrements obtenus par les deux méthodes de détection.

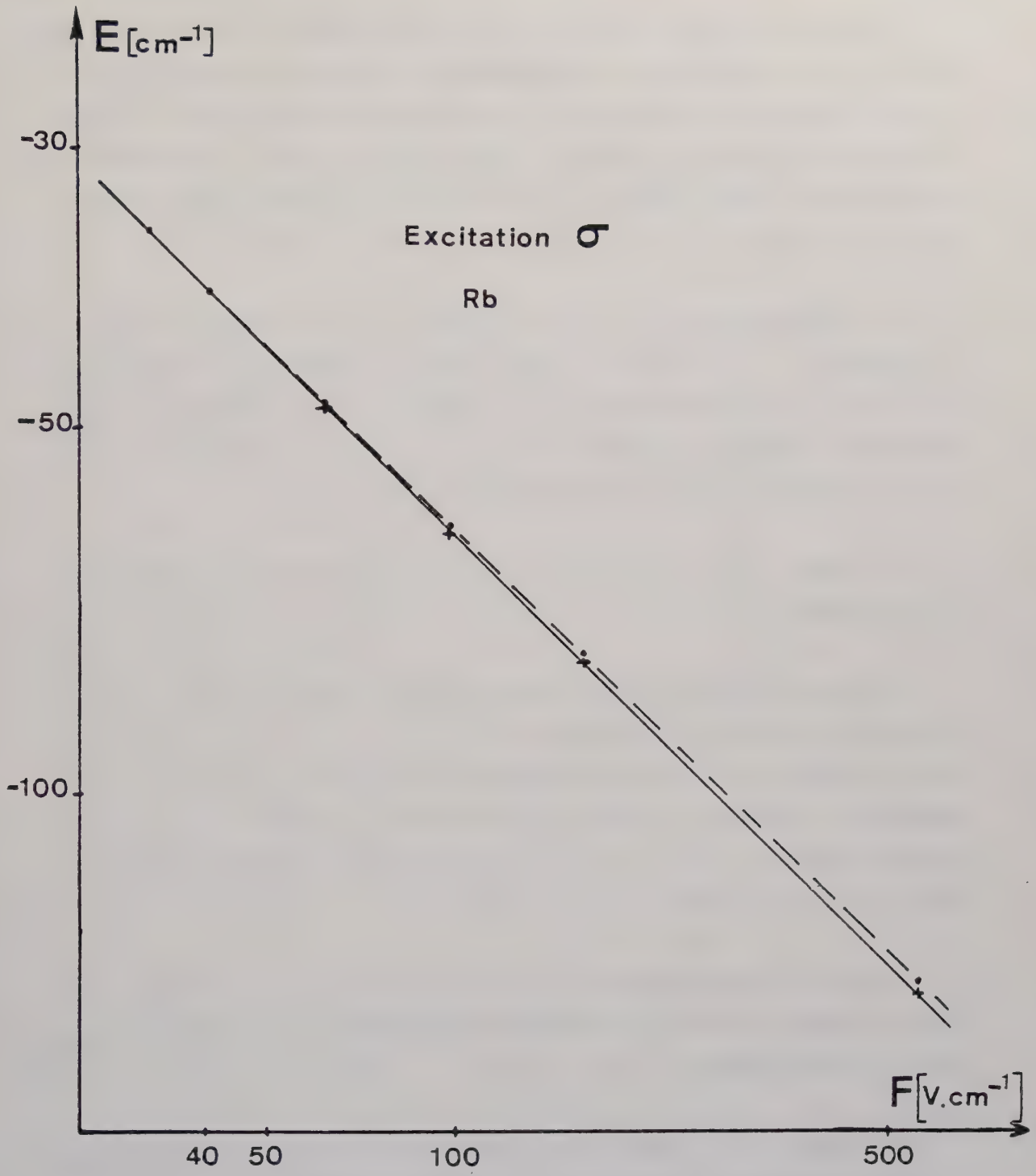


FIGURE III-5

Dépendance en champ électrique de l'énergie critique d'ionisation

• points théoriques,

+ points expérimentaux.

Lors d'un balayage vers les grandes fréquences, l'expérience montre que les ions ne commencent à arriver dans la porte du compteur qu'à partir d'une certaine énergie E_c qui sera considérée comme l'énergie d'ionisation associée au champ F ; en effet pour $E < E_c$ les atomes sont stables vis à vis du champ F ($\Gamma_I < \tau_1^{-1}$) et aucun signal ne peut être ainsi détecté.

La détermination de la valeur exacte de cette énergie critique d'ionisation E_c se fait de la même façon que précédemment sauf que, une fois la structure du niveau nP enregistrée, on supprime le champ pulsé et on applique le champ continu F tout en continuant le balayage en fréquence jusqu'à l'apparition des ions .

La figure III 4 montre les spectres obtenus dans ces deux types d'expériences.

On peut remarquer que ces deux spectres possèdent en fait une partie commune. En effet la relation $\tau > \tau_1$ et $\tau < \tau_1$ n'est pas strictement réalisée et il existe toujours une plage de recouvrement pour laquelle on observera un signal dans les deux cas. Cette zone de recouvrement passe de 0,2 à 2 cm^{-1} quand l'énergie du domaine étudié diminue de $E \simeq -35$ cm^{-1} à $E \simeq -150$ cm^{-1} .

Tous ces enregistrements, faits en polarisation σ ($|\Delta m_\ell| = 1$), nous ont permis de tracer la courbe expérimentale de l'énergie critique sur la plage d'énergie [$E \simeq -144$ cm^{-1} $n = 30p$ à $E \simeq -35$ cm^{-1} $n = 60p$].

La figure III 5 montre que l'écart entre les points expérimentaux et théoriques est de l'ordre de 1% (voir le tableau I pour les valeurs expérimentales).

TABLEAU I

F (V/cm) (0,8 %)	E_c^{th} ($\|m_\ell\| = 1$) (cm^{-1}) (0,4%)	E_c^{exp} (cm^{-1})
32,7	-34,8	-34,9 ± 0,1
41,3	-39,1	-39,5 ± 0,1
62	-47,9	-48,2 ± 0,1
99,1	-60,5	-61,1 ± 0,1
162	-77,4	-78,4 ± 0,1
564	-144	-145,4 ± 0,2

B - INFLUENCE DU NOMBRE QUANTIQUE $|m_\ell|$ SUR L'ENERGIE CRITIQUE D'IONISATION

Les expériences faites à basse résolution sur des niveaux de Rydberg moyennement excités ($n < 18$ pour le sodium) ont montré que le champ critique d'ionisation d'un niveau $n\ell$ dépendait de la valeur du nombre $|m_\ell|$ choisi (pour le niveau 15D du sodium on trouve $F_c(m_\ell = 0) = 7{,}42$ kV/cm, $F_c(|m_\ell| = 1) = 7{,}74$ kV/cm et $F_c(|m_\ell| = 2) = 8{,}62$ kV/cm) [57] .

Examinons dans le cas de l'atome d'hydrogène la forme de l'énergie potentielle effective V_{eff} de l'électron se trouvant dans un état $|m_\ell|$ bien déterminé du niveau $n\ell$.

La généralisation de l'étude classique du mouvement d'un électron placé dans un état $| n, \ell, m_\ell \rangle$ avec $m_\ell \neq 0$ se fait en ajoutant une énergie potentielle centrifuge à l'énergie potentielle d'un électron S plongé dans un champ électrique F ; V_{eff} peut alors s'écrire sous la forme [61] :

$$V_{eff} = \frac{m_\ell^2}{2\rho^2} - Fz - \frac{1}{r} \qquad \text{(unités atomiques)}$$

avec $\rho^2 = r^2 - z^2$

Le maximum de la fonction $V_{eff}(\rho, z)$ est obtenu en étudiant les dérivées de V_{eff} par rapport à ρ et z , soit :

$$\frac{\partial V_{eff}}{\partial z} = \frac{z}{r^3} - F \qquad \text{et} \qquad \frac{\partial V_{eff}}{\partial \rho} = \frac{-m_\ell^2}{\rho^3} + \frac{\rho}{r^3}$$

Le maximum de V_{eff} a lieu pour une valeur $r = r_o (|m_\ell|)$:

$$r_o (|m_\ell|) \left[1 - r_o^4 (|m_\ell|) F^2 \right]^2 = m_\ell^2$$

Dans le cas d'un état $m_\ell = 0$, on retrouve la position du maximum : $r_o(m_\ell = 0) = F^{-\frac{1}{2}}$ (modèle élémentaire à une dimension - chapitre I)

L'ionisation de l'atome d'hydrogène a lieu pour une énergie E supérieure ou égale à la valeur prise par V_{eff} au point $r = r_o(|m_\ell|)$.

$$E \geq E_c (|m_\ell|) = - \frac{1 + 3r_o^4(|m_\ell|)F^2}{2r_o(|m_\ell|)}$$

Comme le nombre quantique $|m_\ell|$ est généralement petit ($|m_\ell| \ll n$, nombre quantique principal), la position du maximum de V_{eff} est donnée approximativement par :

$$r_o(|m_\ell|) \simeq r_o(m_\ell = 0) - \frac{|m_\ell|}{4} F^{-1/4}$$

L'énergie critique d'ionisation est alors égale, au premier ordre en $|m_\ell|$, à :

$$E_c (|m_\ell|) = -2\sqrt{F} + |m_\ell| F^{3/4} .$$

Il est à noter que ces calculs classiques n'ont pu être menés que dans le cas simple de l'atome d'hydrogène ; toutefois ils rendent bien compte de l'énergie critique d'ionisation dans le cas d'atomes quelconques.

On comprend bien pourquoi les états de $|m_\ell|$ élevés ont des seuils d'ionisation plus élevés. En effet, considérons un électron dont la projection m_ℓ du moment orbital sur la direction du champ électrique (axe Oz) est non nulle ; cet électron est animé d'un mouvement dans le

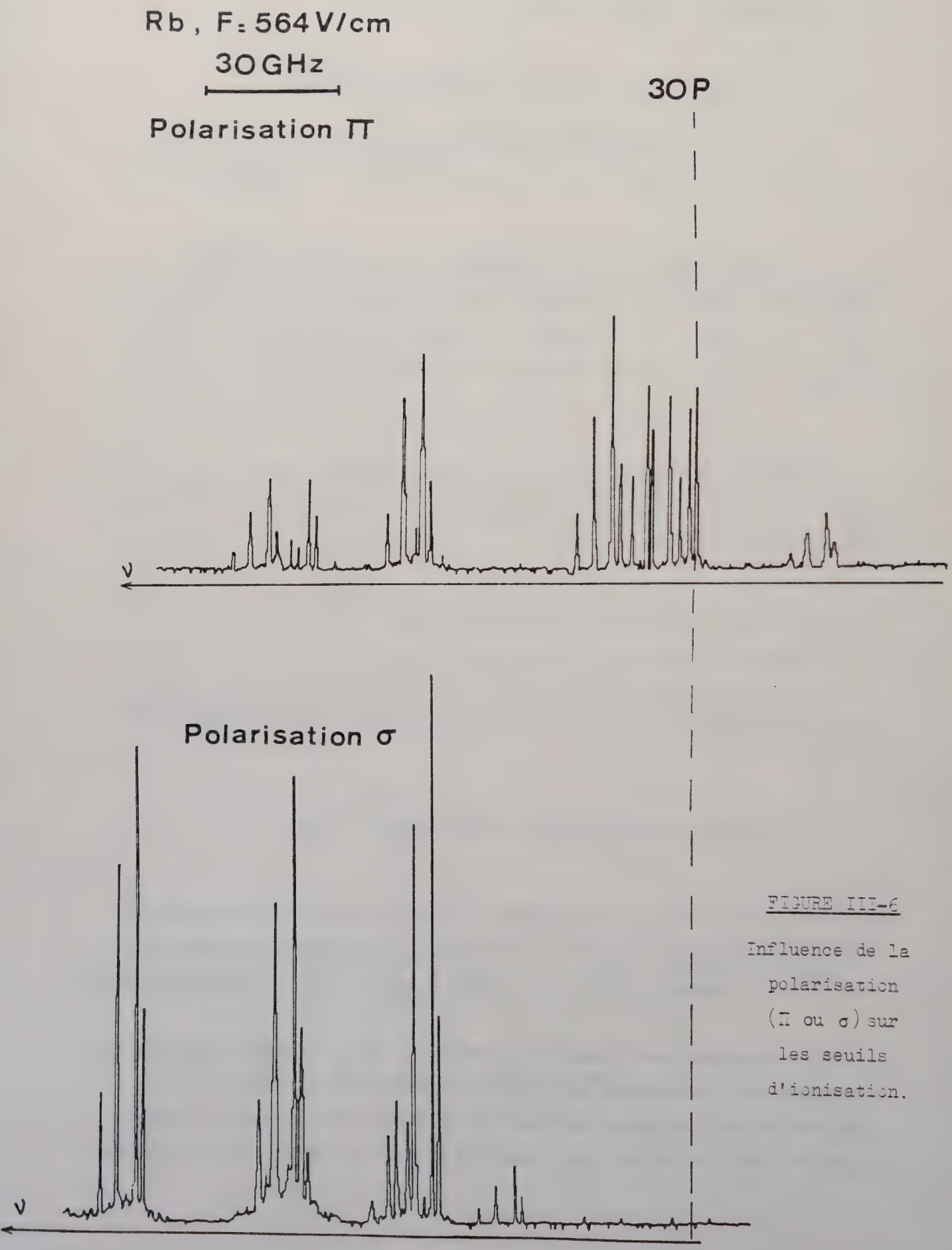


FIGURE III-6

Influence de la polarisation (Π ou σ) sur les seuils d'ionisation.

plan perpendiculaire à Oz . Comme seul le mouvement suivant l'axe Oz est susceptible d'ioniser l'atome, on comprend que, pour une énergie totale E donnée, l'énergie cinétique de cet électron suivant Oz (c'est à dire la probabilité d'ionisation par le champ F) sera d'autant plus faible que le nombre quantique $|m_\ell|$ sera plus grand.

Ainsi donc pour un champ continu F donné, la variation d'énergie critique est donnée par

$$\Delta E = |m_\ell| \, F^{3/4}$$

soit une variation relative de $\frac{\Delta E}{E} = \frac{|m_\ell| \, F^{3/4}}{2F^{1/2}} = \frac{|m_\ell|}{2\sqrt{2}} E^{1/2}$.

Comme notre technique de très haute résolution nous permet d'apprécier facilement des écarts d'énergie $\Delta E \geqslant 0{,}5 \text{ cm}^{-1}$, on trouve que les seuils d'ionisation, associés aux nombres quantiques $m_\ell = 0$ et $|m_\ell| = 1$ par exemple, seront distincts tant que $n \leq 40$.

Dans le cas d'un laser à basse résolution ($\Delta\nu \simeq 1 \text{ cm}^{-1}$) , on ne pourra résoudre les seuils $m_\ell = 0$ et $|m_\ell| = 1$, pour un $\Delta E \simeq 2 \text{ cm}^{-1}$, que pour des $n \leq 25$.

La figure III 6 montre dans le cas de l'atome de rubidium, les seuils d'ionisation $|m_\ell| = 0$ et $|m_\ell| = 1$ déterminés par la très haute résolution dans un champ $F = 564$ V/cm ($n_c \simeq 30$) .

On peut ainsi remarquer que l'expression analytique $\Delta E = |m_\ell| \, F^{3/4}$ rend bien compte de l'écart expérimental en énergie entre les seuils d'ionisation $m_\ell = 0$ et $|m_\ell| = 1$.

En conclusion des deux parties A et B, on peut dire que l'étude en

champ continu F permet de déterminer uniquement la limite d'ionisation classique ainsi que sa dépendance en $|m_\ell|$.

En quoi cette méthode se différencie-t-elle de la méthode utilisant un champ électrique pulsé ?

En fait ces deux méthodes, quoique très différentes, sont complémentaires. Dans la méthode du champ continu, on trouve pour chaque valeur de $|m_\ell|$ une seule énergie critique $E_c(m_\ell)$; par contre dans la méthode du champ pulsé, on trouve pour chaque état $|m_\ell|$ d'un niveau nl un ou plusieurs champs critiques (états S du sodium et du potassium et états nD $|m_\ell|=2$ du sodium [53,57]). Cette multiplicité des seuils d'ionisation reflète le caractère partiellement adiabatique des croisements de niveaux.

On comprend pourquoi la dépendance en $|m_\ell|$ de l'énergie critique d'ionisation a pu être observée facilement au voisinage de $n = 30$ grâce aux techniques de haute résolution, alors que la dépendance en $|m_\ell|$ du champ critique d'ionisation n'a pu être mise en évidence par la méthode du champ électrique en impulsion que sur des niveaux peu excités ($n < 20$) , ce qui a nécessité l'utilisation de champs intenses ($F \sim 5000$ V/cm) .

Les deux méthodes sont complémentaires en ce sens que l'on peut connaître maintenant l'énergie (ou les énergies) de l'état (ou des états) par lequel (ou lesquels) l'atome s'ionise et prévoir ainsi, compte tenu des conditions expérimentales (valeurs de n et de $|m_\ell|$, vitesse d'application du champ pulsé, importance de l'interaction spin-orbite, ...), le ou les chemins empruntés par l'atome pour s'ioniser et en déduire alors la façon dont l'atome franchit tous les croisements.

C- SPECTRES DE PHOTOIONISATION DU RUBIDIUM EN EXCITATION Π ET σ

La plupart des études effectuées au voisinage de la limite d'ionisation classique ($E = E_c$) ont été faites à basse et moyenne résolution ($\Delta\nu \geqslant 0{,}3\ cm^{-1}$) . Il en a résulté essentiellement que les spectres de photoionisation ne présentaient aucune dépendance en fonction de la polarisation du rayonnement excitateur (Π ou σ) .

En effet la grande densité des niveaux Stark (cette densité est proportionnelle à n^4 pour les états $m_\ell = 0$, soit 1 niveau Stark par GHz au voisinage de $n = 40$) ainsi que la grande largeur spectrale du rayonnement laser font que l'on ne peut observer que des raies larges. Celles-ci sont en fait le résultat de la convolution par la répartition spectrale du rayonnement laser d'une multitude de résonances, dont le profil de raie et l'intensité dépendent de la nature de l'état excité ($m_\ell = 0$ ou $|m_\ell| = 1$) .

Dans ces conditions, on explique alors la similitude des spectres de photoionisation Π et σ et on comprend ainsi le peu d'intérêt que pouvait présenter une étude à basse résolution de cette région spectrale [62] .

Disposant de techniques à très haute résolution, nous avons entrepris une étude approfondie de cette région en pensant mettre en évidence un comportement complètement différent des états $m_\ell = 0$ et $|m_\ell| = 1$.

En effet près de $E = E_c$, l'ionisation de certains niveaux Stark est essentiellement due au couplage avec le continuum (l'effet tunnel pour ces niveaux est négligeable), ce qui permet d'avoir une idée sur l'intensité de ce couplage à travers l'intensité, la largeur et la

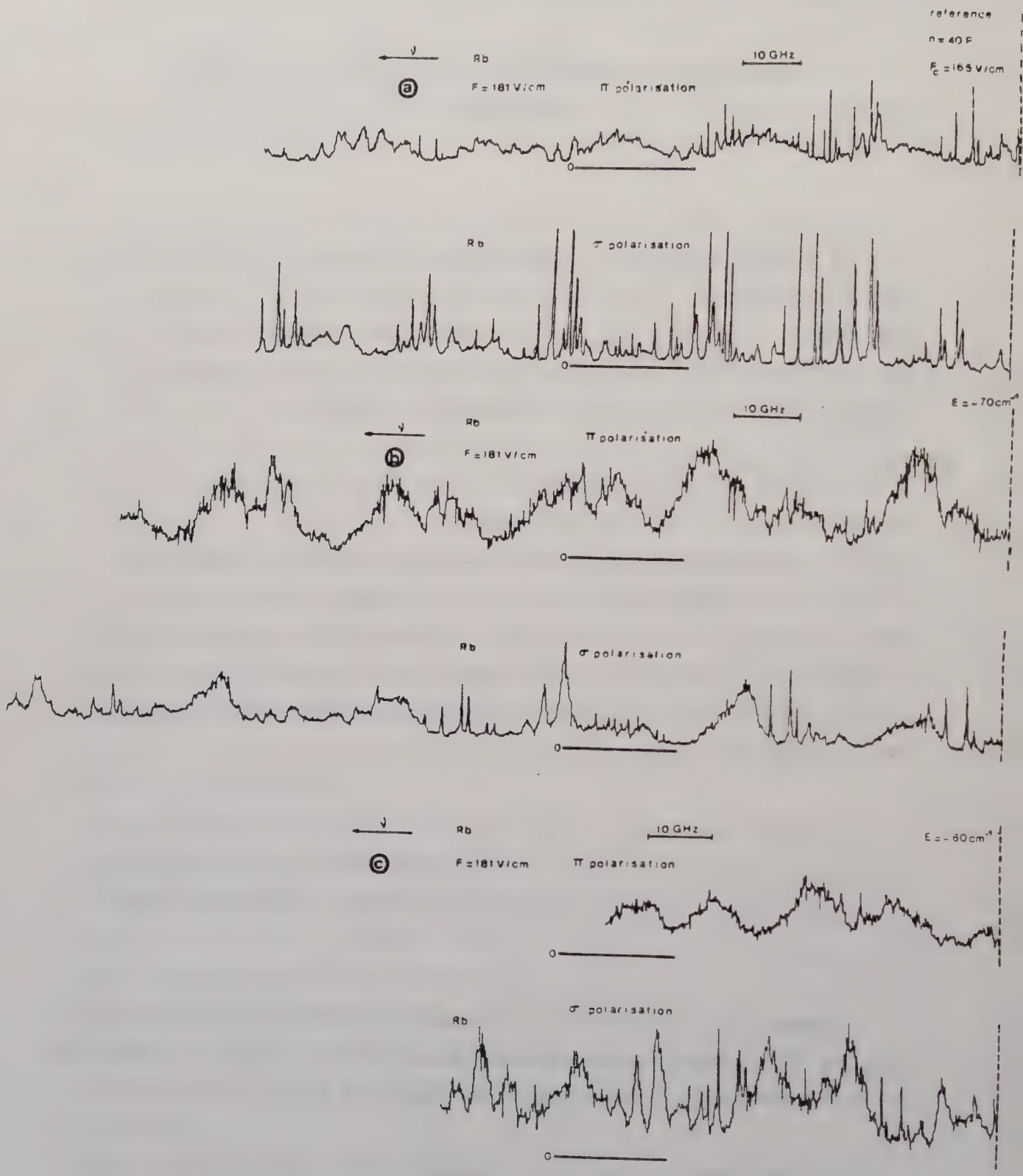


FIGURE III-7

Evolution des spectres de photoionisation obtenus avec le rubidium en excitation Π et σ .

forme des résonances.

En revanche, comme nous le verrons sur les enregistrements, la très haute résolution présente de moins en moins d'avantages au fur et à mesure que l'on s'éloigne de $E = E_c$ car les largeurs de tous les niveaux Stark deviennent alors importantes.

Nous nous proposons tout d'abord d'étudier des spectres de photoionisation Π et σ de l'atome de rubidium au voisinage de $E = E_c$, puis ensuite de suivre leurs évolutions respectives lorsqu'on s'éloigne de $E = E_c$.

Les figures III 7 a, b et c présentent des enregistrements obtenus en excitation Π et σ sur un même domaine d'énergie [$E \simeq -79$ cm^{-1} à $E \simeq -58$ cm^{-1}] et pour une même valeur du champ électrique $F = 181$ V/cm .

L'observation de ces différents spectres de photoionisation suggère en effet quelques remarques :

- Près de la limite d'ionisation classique (figure III 7a) on distingue, dans le cas d'une excitation Π, outre quelques résonances étroites, un fond continu présentant de larges ondulations. En revanche dans le spectre σ on observe en plus des résonances fines et intenses ($\Delta\nu = 300$ MHz) d'autres résonances moins étroites ($\Delta\nu \simeq 0{,}1$ cm^{-1}) . On reconnait facilement sur le spectre σ la structure hyperfine de l'état fondamental $5\,^2S_{\frac{1}{2}}$.

- On observe également dans chacun des spectres Π et σ (figures III 7a et b) une double structure périodique composée de raies

dont les largeurs sont assez différentes. En effet dans le spectre Π de la figure III 7a ($E \simeq -79\ cm^{-1}$) ou le spectre σ de la figure III 7b ($E \simeq -70\ cm^{-1}$) on a simultanément des raies larges ($\Delta\nu \simeq 0{,}3\ cm^{-1}$) et des raies fines ($\Delta\nu \simeq 300$ MHz) .

Cette différence de formes de raies dans un même spectre ne peut pas s'expliquer en attribuant les raies fines aux niveaux stables ($n_1 \simeq n$) d'une multiplicité n et les raies larges aux niveaux instables ($n_1 \simeq 0$) d'une autre multiplicité n' , parce que les périodes des structures larges et fines auraient été très différentes. Comme les périodicités observées sont quasi identiques, on peut admettre que les raies fines et larges appartiennent à la même multiplicité n.

Dans ce cas les deux formes de raies observées reflètent une importante différence dans l'intensité du couplage des états correspondants avec le continuum. Cette différence ne peut se comprendre que si on tient compte de l'interaction spin-orbite dans la description de l'état de l'atome en présence d'un champ électrique.

En effet divers expériences et calculs faits sur des atomes alcalins lourds (Rb et Cs) ont permis de mettre en évidence le rôle joué par l'interaction spin-orbite dans le mécanisme d'ionisation par champ de sorte que le bon nombre quantique n'est plus $|m_\ell|$ mais plutôt la projection $|m_j|$ du moment cinétique total [38, 68] .

Ainsi dans chaque spectre $|m_j|$ on pourra distinguer, compte tenu de la très faible largeur spectrale du laser monomode pulsé, deux multiplicités de nature différente qui seront associées aux états $|m_\ell| = |m_j| + \frac{1}{2}$ et $|m'_\ell| = |m_j| - \frac{1}{2}$.

Ces deux multiplicités $|m_\ell|$ et $|m'_\ell|$ sont couplées par l'intermédiaire de l'interaction spin-orbite associée aux états de moment cinétique orbital $\ell \geq |m_\ell|$.

1- Spectres de photoionisation Π et σ au voisinage de la limite d'ionisation classique (figure III 7 a)

Dans le spectre de photoionisation obtenu en excitation Π , les atomes de rubidium sont portés, à partir de l'état fondamental $5\ ^2S_{\frac{1}{2}}$ $|m_j| = \frac{1}{2}$ $m_\ell = 0$, dans des états $|m_j| = \frac{1}{2}$ qui sont en fait un mélange d'états $m_\ell = 0$ et $|m_\ell| = 1$.

Comme les états $m_\ell = 0$ sont fortement non hydrogénoïdes parce qu'ils sont les seuls à contenir un caractère S ($\ell = 0$) , ils sont en conséquence très couplés aux états du continuum et ils apparaissent alors sous la forme de larges résonances telles que celles observées dans le spectre.

On trouve également, au voisinage de $E = E_c$, un bon accord entre leur période $\Delta E = 0{,}83\ cm^{-1}$ et la période $\Delta E = 1{,}5\ F^{3/4}$ u.a (énergie séparant deux sous-niveaux Stark de la même multiplicité $n_c = 0{,}5\ F^{-1/4} \simeq 36$) obtenue par un calcul de perturbation du premier ordre appliqué au modèle hydrogénoïde [3] .

En revanche les résonances fines du spectre Π ne peuvent être associées qu'aux états $|m_\ell| = 1$; en effet ces états sont beaucoup plus hydrogénoïdes que les états $m_\ell = 0$ et en conséquence moins couplés au continuum, c'est à dire que leur durée de vie à l'ionisation est plus longue.

Dans le cas d'une excitation σ , les atomes de rubidium sont portés dans des états $|m_j| = \frac{3}{2}$ c'est à dire un mélange d'états $|m_\ell| = 1$ et $|m_\ell| = 2$. Pour les mêmes raisons invoquées ci-dessus, on peut faire correspondre respectivement les résonances étoites et larges du spectre σ aux états $|m_\ell| = 2$ et $|m_\ell| = 1$.

En résumé on peut dire que la différence de structures entre les

spectres Π et σ , qui n'aurait pas été observée sans doute dans une expérience faite à basse résolution, illustre de façon claire une évolution du caractère des états excités vers un caractère hydrogénoïde lorsque la valeur du nombre quantique $|m_\ell|$ de l'état excité augmente.

2-Evolution des spectres de photoionisation Π et σ

Les figures III 7 b et c montrent des spectres de photoionisation Π et σ obtenus respectivement au voisinage de $E = -70\ cm^{-1}$ et $E = -60\ cm^{-1}$, c'est à dire à respectivement 10 et 20 cm^{-1} de l'énergie critique E_c .

On peut remarquer que les raies fines ont complètement disparu du spectre Π ; en effet, à mesure que l'on s'éloigne de $E = E_c$, les largeurs des résonances associées aux états $|m_\ell| = 1$ augmentent jusqu'à devenir du même ordre de grandeur que les largeurs des résonances $m_\ell = 0$.

En revanche dans le spectre σ on peut encore voir, outre des résonances larges, des résonances très étroites ($\Delta\nu \simeq 300$ MHz) et d'autres moins étroites ($\Delta\nu \simeq 3000$ MHz) et ceci à plus de 20 cm^{-1} de la limite d'ionisation classique $E_c = -82\ cm^{-1}$ (figure III 7c).

Pour des énergies plus élevées ($E \geq -60\ cm^{-1}$) toutes les résonances deviennent suffisamment larges au point que les structures des spectres σ et Π deviennent pratiquement identiques. En fait on verra au chapitre IV que cette similitude spectrale disparaît totalement lorsqu'on se trouve au voisinage de $E = 0$.

En conclusion on peut dire tout d'abord que c'est grâce aux techniques de très haute résolution que l'on a pu mettre en évidence au voisinage de l'énergie critique $E = E_c$ une différence entre les spectres de photoionisation du rubidium obtenus en excitation Π et σ.

Cette différence illustre bien le fait que les états du spectre σ

sont, au voisinage de $E = E_c$, beaucoup moins couplés aux états du continuum que les étas du spectre Π .

En effet, contrairement au spectre Π , le spectre σ contient encore loin de $E = E_c$ des résonances étroites, dont nous nous proposons d'ailleurs d'étudier le profil dans la prochaine partie.

D - OBSERVATION DES PROFILS DE FANO DANS LES SPECTRES DE PHOTO-IONISATION EN PRESENCE D'UN CHAMP CONTINU

Lors de l'étude de l'ionisation par champ électrique des atomes alcalins, nous avons indiqué deux mécanismes d'ionisation :

- Le premier processus est uniquement de l'effet tunnel ; il rend compte entièrement du comportement de l'atome d'hydrogène en présence d'un champ électrique.

- Le second processus, qu'on rencontre dans tous les atomes et même dans l'hydrogène, dans la mesure où l'interaction spin-orbite ne peut pas être négligée, est une conséquence de la brisure de la supersymétrie de l'atome d'hydrogène [36]. Il existe alors une interaction entre les niveaux discrets et le continuum à la suite de quoi ces niveaux stables s'ionisent.

Ce deuxième processus d'ionisation permet ainsi de comprendre le rôle joué par la limite d'ionisation classique (modèle classique). Néanmoins aucune preuve expérimentale de ce type de couplage, qui doit se manifester par l'apparition de profils asymétriques dits profils de Fano, n'a été encore apportée.

L'objet de cette partie est d'exposer les conditions dans lesquelles de tels profils ont été observés. Mais au préalable nous rappellerons les principaux résultats concernant les interactions entre niveaux discrets et continuum.

D 1. DESCRIPTION D'UNE INTERACTION ENTRE UN NIVEAU DISCRET ET UN CONTINUUM

Pour étudier l'interaction entre un niveau discret et un continuum, nous utiliserons le formalisme développé par Fano [31] qui permet de déterminer les fonctions d'ondes exactes du système perturbé.

Pour simplifier les calculs qui suivent, nous ferons l'hypothèse que le spectre de l'hamiltonien non perturbé H_o comprend un état discret $|\varphi\rangle$ (non dégénéré) d'énergie E_φ et un ensemble d'états $|\alpha E\rangle$ formant un continuum (α représente un ensemble de paramètres permettant de lever la dégénérescence entre tous les états d'énergie E):

$$\langle \varphi |H_o| \varphi \rangle = E_\varphi \quad \text{et} \quad \langle \alpha E |H_o| \beta E' \rangle = \delta_{\alpha\beta}\, \delta(E - E') \,.\, E \quad .$$

Supposons que l'état $|\varphi\rangle$ soit couplé aux états du continuum $|\alpha E\rangle$ par une perturbation V telle que : $\langle \varphi |V| \alpha E \rangle = V_E$ où V_E est une fonction lentement variable de l'énergie ($\langle\varphi|V|\varphi\rangle = \langle\alpha E|V|\alpha E\rangle = \langle\alpha E|V|\beta E'\rangle = 0$).

Le spectre de $H = H_o + V$ est un spectre continu et quelle que soit la valeur E de l'énergie, la fonction d'onde exacte $|\Psi_E\rangle$ peut être développée sur les états propres de H_o :

$$|\Psi_E\rangle = a(E)\, |\varphi\rangle + \int_0^\infty b_{E'}(E)\, |\alpha\, E'\rangle\, dE' \quad .$$

La diagonalisation de la matrice $H = H_o + V$ sur les états propres de H_o permet de calculer les coefficients $a(E)$ et $b_{E'}(E)$ soit :

$$\begin{cases} a(E) = \dfrac{\sin \Delta(E)}{\Pi\, V_E} = \dfrac{|V_E|}{\{(E - E_\varphi - F(E))^2 + \Pi^2 |V_E|^4\}^{1/2}} \\ b_{E'}(E) = \dfrac{V_{E'}}{\Pi V_E} \cdot \dfrac{\sin \Delta(E)}{E - E'} - \cos \Delta \cdot \delta(E - E') \end{cases}$$

où le paramètre $\Delta(E)$ est défini par $tg\,\Delta(E) = -\dfrac{\pi\,|V_E|^2}{E-E_\varphi-F(E)}$ avec

$$F(E) = P.P.\int_0^\infty \frac{|V_{E'}|^2}{E-E'}\,dE' \quad (P.P. : \text{partie principale de l'intégrale}).$$

Le terme $a(E)$ traduit une dilution de l'état discret $|\varphi\rangle$ sur tous les états $|\alpha E\rangle$ du continuum : l'état $|\varphi\rangle$ disparaît pour se retrouver sur tous les états $|\alpha E\rangle$ d'énergies différentes.

Dans le cas où V_E est une fonction lentement variable de l'énergie, $|a(E)|^2$ est une lorentzienne centrée sur $E_R = E_\varphi + F(E_R)$ et de largeur $\Gamma = 2\pi\,|V_E|^2$ où $F(E_R)$ et Γ représentent respectivement le déplacement énergétique et la largeur de l'état discret dus au couplage avec les divers états $|\alpha E\rangle$ du continuum.

En effet pour trouver la signification physique de la largeur $\Gamma = 2\pi\,|V_E|^2$ de la fonction $|a(E)|^2$, il suffit d'étudier l'évolution au cours du temps de l'état du système.

Supposons que le système soit à l'instant $t = 0$ dans un état discret $|\varphi\rangle$ de grande durée de vie. Comment alors évolue le système si on branche l'interaction V_E.

Le développement de l'état initial $|\varphi\rangle$ sur les états propres $|\Psi_E\rangle$ de l'hamiltonien $H = H_o + V$ permet d'écrire :

$$|F(t=0)\rangle = |\varphi\rangle = \int \langle\varphi\,|\,\Psi_{E'}\rangle\,|\Psi_{E'}\rangle\,dE' = \int a(E')\,|\Psi_{E'}\rangle\,dE' \quad .$$

A un instant ultérieur t, la fonction d'onde $|F(t)\rangle$ devient

$$|F(t)\rangle = \int a(E')\,e^{-iE't/\hbar}\,|\Psi_{E'}\rangle\,dE' \quad .$$

L'amplitude de probabilité de trouver le système dans l'état $|\varphi\rangle$ à l'instant t est donnée par :

$$\langle\varphi|F(t)\rangle = \int a(E')\,\langle\varphi|\Psi_{E'}\rangle\,e^{-iE't/\hbar}\,dE' = \int |a(E')|^2\,e^{-iE't/\hbar}\,dE' \quad .$$

L'expression $\langle \varphi | F(t) \rangle$, qui est la transformée de Fourier de la lorentzienne $|a(E)|^2 = \dfrac{|V_E|^2}{(E - E_\varphi - F(E))^2 + \pi^2 |V_E|^4}$, est une exponentielle décroissante du temps.

Sous l'effet du couplage avec les états du continuum $|\alpha E\rangle$, la durée de vie de l'état dicret $|\varphi\rangle$ prendra une valeur finie égale à $\hbar/2\pi|V_E|^2$, c'est à dire que le niveau $|\varphi\rangle$ aura une largeur spectrale $\Gamma = 2\pi |V_E|^2$.

Si on s'intéresse à des états d'énergie E tels que $|E - E_\varphi| \gg \pi|V_E|^2$, le coefficient $a(E)$ prend une forme simple : $a(E) = \dfrac{|V_E|}{E - E_\varphi}$.

On retrouve ainsi le résultat de la théorie des perturbations au premier ordre qui donne la contribution de l'état $|\varphi\rangle$ aux états $|\alpha E\rangle$.

Le premier terme de $b_{E'}$, $\left(\dfrac{\sin \Delta(E)}{\pi V_E} \dfrac{V_{E'}}{E - E'} \right)$ peut sécrire pour $|E - E_R| \gg \pi|V_E|^2$ sous la forme $\dfrac{V_E}{E-E_R} \dfrac{V_{E'}}{E-E'}$; ce terme qui fait apparaître le carré de la perturbation V_E ne peut être pris en compte par un calcul au 1er ordre de la théorie des perturbations. Il représente le couplage entre états du continuum $|\alpha E\rangle$ et $|\alpha E'\rangle$ induit par l'état discret $|\varphi\rangle$, ce couplage apparaissant à des ordres de perturbations supérieurs ou égaux à deux. Ce terme varie très lentement quand l'énergie varie d'une quantité égale à $\pm \Gamma$ autour de la valeur E_R.

Le deuxième terme $\cos \Delta(E)\, \delta(E-E')$ apparaissant dans $b_{E'}$, représente la contribution à l'état perturbé d'énergie E , provenant des états du continuum non perturbé $|\alpha E\rangle$ de même énergie E . Ce terme s'annule en changeant de signe pour $E = E_R$ et varie très rapidement quand E varie de la quantité $\pm \Gamma$ autour de E_R .

Ainsi donc la fonction $|\Psi_E\rangle$ peut se mettre sous la forme de

deux termes :

- un premier terme qui représente l'action de tous les états continus d'énergie $E' \neq E$ et de l'état discret $|\varphi\rangle$.

- un deuxième terme qui tient compte uniquement de l'action des états d'énergie $E' = E$.

$$|\Psi_E\rangle = \frac{\sin \Delta(E)}{\Pi |V_E|} |\Phi\rangle - \cos \Delta(E) \; |\alpha\, E\rangle$$

où $|\Phi\rangle = |\varphi\rangle + P.P \int \frac{dE' \; V_{E'} \; |\alpha\, E'\rangle}{E - E'}$ peut être considéré comme étant la fonction d'onde de l'état discret $|\varphi\rangle$ perturbé par les états non résonnants du continuum (états d'énergie $E \neq E_\varphi$).

La probabilité de transition entre l'état initial $|i\rangle$ et l'état $|\Psi_E\rangle$ est proportionnelle au carré de l'élément de matrice $\langle \Psi_E | T | i \rangle$ de l'opérateur transition :

$$|\langle \Psi_E | T | i \rangle|^2 = \frac{1}{\Pi^2 |V_E|^2} |\langle \Phi_E | T | i \rangle|^2 \sin^2 \Delta(E) + |\langle \alpha\, E | T | i \rangle|^2 \cos^2 \Delta(E)$$

$$- 2 \langle \alpha\, E | T | i \rangle \langle \Phi_E | T | i \rangle \frac{\sin \Delta(E) \cdot \cos \Delta(E)}{\Pi |V_E|}$$

$$= |\langle \Phi_E | T | i \rangle|^2 \frac{|V_E|^2}{(E - E_\varphi - F(E))^2 + \Pi^2 |V_E|^4} + |\langle \alpha\, E | T | i \rangle|^2 \frac{(E - E_\varphi - F(E))^2}{(E - E_\varphi - F(E))^2 + \Pi^2 |V_E|^4}$$

$$- 2 |V_E| \langle \alpha\, E | T | i \rangle \langle \Phi_E | T | i \rangle \frac{E - E_\varphi - F(E)}{(E - E_\varphi - F(E))^2 + \Pi^2 |V_E|^4} \; .$$

Les deux premiers termes sont des fonctions symétriques de l'énergie E et sont résonnants pour $E_R = E_\varphi + F(E_R)$.

Le dernier terme change de signe de part et d'autre de $E = E_R$ et confère ainsi un caractère asymétrique à la fonction $|\langle \Psi_E | T | i \rangle|^2$.

De façon imagée, on dit qu'il y a interférence entre le processus

de photoionisation directe ($|i\rangle \rightarrow |\alpha E\rangle$) et le processus de photoionisation via l'état autoionisé ($|i\rangle \rightarrow |\varphi\rangle \rightarrow |\alpha E\rangle$) , ces interférences étant constructives d'un côté de la résonance et destructives de l'autre côté.

Compte-tenu de la forme de la fonction d'onde Ψ_E , la section efficace de photoionisation $\sigma(E)$ de l'état $|i\rangle$ s'écrit :

$$\sigma(E) = \frac{4\Pi^2}{137} .E. |\langle \Psi_E |T| i\rangle|^2 = \sigma_c(E) . \frac{(q+\epsilon)^2}{1+\epsilon^2}$$

où - $\epsilon = \dfrac{E - E_R}{\Gamma/2}$

- $\sigma_c(E) = \dfrac{4\Pi^2}{137} E . |\langle \alpha E |T| i\rangle|^2$ est la section efficace de photoionisation en l'absence de l'état $|\varphi\rangle$.

- $q = \dfrac{\langle \Phi |T| i\rangle}{\Pi V_E \langle \alpha E |T| i\rangle}$ dont le carré est proportionnel au rapport des probabilités de transitions issues du niveau $|i\rangle$ d'une part vers $|\Phi\rangle$ l'état discret perturbé par la partie non résonnante du continuum, d'autre part vers une bande de continuum résonnant de largeur $\Pi^2 V_E^2 = \dfrac{\Pi}{2}\Gamma$.

On notera que la fonction $\sigma(E)$ présente un minimum pour $\epsilon = -q$, ce qui est une conséquence directe de l'interaction $|\varphi\rangle \rightarrow |\alpha E\rangle$; ce minimum est nul uniquement si $|\varphi\rangle$ interagit avec un seul continuum.

Ce minimum ne serait plus nul dans le cas où le niveau $|\varphi\rangle$ serait couplé à deux ou plusieurs continuums [31] . En effet la probabilité de transition entre l'état initial $|i\rangle$ et les états propres $|\Psi_{1E}\rangle$, $|\Psi_{2E}\rangle \ldots$, $|\Psi_{nE}\rangle$ d'énergie E serait égale à :

$|\langle \Psi_{1E}|T| i\rangle|^2 + |\langle \Psi_{2E}|T| i\rangle|^2 \ldots + |\langle \Psi_{nE}|T| i\rangle|^2$ (cas de n continuums)

Le premier terme de la somme aura une structure de résonance au voisinage de l'énergie $E = E_\varphi + G(E)$ où :

$$G(E) = \text{P.P.} \int_0^\infty dE' \frac{|V_{E'}|^2 + |W_{E'}|^2 + \ldots}{E - E'} \qquad (W_{E'} = \langle \varphi | W | \beta E' \rangle) \ .$$

Quant aux autres termes de la somme, ils ne sont pas affectés par la résonance et représentent ainsi le fond du signal de photoionisation.

Dans ces conditions, l'expression de la section efficace $\sigma(E)$ est donnée par :

$$\sigma(\varepsilon) = \sigma_a \frac{(q + \varepsilon)^2}{1 + \varepsilon^2} + \sigma_b \qquad \text{où } \sigma_b \text{ rend compte des transitions}$$

entre l'état $|i\rangle$ et les états du continuum qui n'interagissent pas avec l'état $|\varphi\rangle$.

Les caractéristiques principales d'un profil de raie autoionisée, qu'on peut évaluer quantitativement, sont :

- la largeur spectrale $\Gamma = 2\Pi \, |\langle \varphi | V | \alpha E \rangle|^2$ de la raie autoionisée.

- la valeur E_R de l'énergie de résonance.

- Le minimum $\sigma = \sigma_b$ et le maximum $\sigma = (q^2 + 1)\sigma_a + \sigma_b$ que prend la fonction $\sigma(\varepsilon)$ au voisinage de $\varepsilon = \frac{1}{q}$ ($E = E_R$) . On en déduit immédiatement la valeur du paramètre q , qui caractérise l'intensité du couplage discret-continuum.

Dans la mesure où l'on connaît les sections efficaces absolues (σ_a ou σ_b) , on peut avoir aussi accès à la force d'oscillateur f entre le niveau $|i\rangle$ et l'état discret $|\varphi\rangle$ ($f \propto |\langle i | T | \varphi \rangle|^2 \simeq \Gamma(q^2 - 1)\sigma_a$) ainsi qu'à la densité spectrale de forces d'oscillateurs $\frac{df}{dE} \propto |\langle i | T | \Psi_E \rangle|^2$.

D'un point de vue expérimental, la mise en évidence d'un profil dissymétrique, qui est le résultat de l'interférence, peut s'avérer parfois difficile et ceci pour plusieures raisons :

- Pour des valeurs élevées du paramètre q , qui sont obtenues soit pour $V_E = 0$, soit pour $\langle i \,|T|\, \alpha E \rangle = 0$, le profil de raie est pratiquement lorentzien.

La première condition correspond à un état discret non couplé aux états du continuum et le profil de la raie tend vers une fonction de Dirac.

Dans le second cas la probabilité de transition vers le continuum non perturbé est nulle et le profil de la raie est proportionnel à la densité spectrale d'état discret perturbé $|\, a(E) \,|^2$.

- Pour des faibles valeurs du paramètre q , qui correspondent soit à une annulation de la probabilité de transition vers l'état discret modifié par un mélange d'états non résonnants du continuum (état $|\Phi\rangle$), soit à un couplage intense entre l'état discret non perturbé $|\varphi\rangle$ et les états $|\alpha E\rangle$ du continuum, le profil spectral de la raie est proportionnel à la quantité $\cos^2 \Delta(E)$ qui donne la contribution de l'état non perturbé $|\alpha E\rangle$ du continuum à l'état perturbé $|\Psi_E\rangle$ de même énergie.

Le profil observé a alors la forme d'un profil d'absorption d'amplitude relativement faible et dont la détection est en général difficile.

De façon imagée on dit que la présence de l'état discret $|\varphi\rangle$ "creuse un trou" dans le continuum.

- Enfin le manque de résolution spectrale peut faire que la dyssymétrie de la fonction $\sigma(E)$ échappe à l'observation.

Considérons maintenant le cas plus complexe où une série d'états discrets $|\varphi_1\rangle$, $|\varphi_2\rangle$, ... $|\varphi_n\rangle$ d'énergie E_1 , E_2 , ... E_n est en interaction avec un spectre continu $|\alpha E\rangle$.

On suppose que la perturbation ne couple pas les états discrets entre eux, c'est à dire que dans une étape antérieure on a diagonalisé la matrice de la perturbation construite sur tous les états discrets $|\varphi_1\rangle$ ... $|\varphi_n\rangle$.

Les seuls éléments de couplage non nuls sont du type $\langle \alpha E|H|\varphi_n\rangle = V_{nE}$. La fonction d'onde exacte $|\Psi_E\rangle$ du système total peut être développée sur la base des états non perturbés : $|\Psi_E\rangle = \sum_n a_n(E)\,|\varphi_n\rangle + \int b_{E'}(E)|\alpha E'\rangle dE'$.

En fait les états discrets qui sont en interaction avec un même continuum sont indirectement couplés entre eux par la perturbation :

$$F_{nm}(E) = \text{P.P.} \int \frac{V_{nE'}\ V_{mE'}}{E - E'}\ dE'$$

où F_{nn} représente le déplacement du niveau E_n dû à l'interaction avec le continuum.

Dans un traitement par perturbation une telle interaction n'apparaît qu'à des ordres supérieurs ou égaux à deux. Dans un premier temps on peut traiter de façon exacte l'effet de cette perturbation sur les seuls états discrets en diagonalisant la matrice $(E_n\ \delta_{nm} + F_{nm}(E))$. Les valeurs propres de ce système sont égales à E_ν et les fonctions propres correspondantes s'expriment sous la forme

$$|\bar{\varphi}_\nu\rangle = \sum_n |\varphi_n\rangle\ A_{\nu n} \quad .$$

Ces états sont couplés au continuum par l'interaction $\bar{V}_{\nu E} = \sum_n V_{nE}\ A_{\nu n}$.

Le couplage entre les états discrets par l'intermédiaire de l'interaction avec le continuum modifie les énergies des états discrets et change la valeur de l'interaction entre ces nouveaux états discrets $|\bar{\varphi}_\nu\rangle$

et le continuum . Dans certaines conditions un état donné $|\bar{\varphi}_{\nu_o}\rangle$ peut être tel que $\bar{V}_{\nu_o} = 0$, c'est à dire qu'il n'est plus couplé au continuum.

L'interaction entre les états discrets et le continuum a eu pour effet de stabiliser un niveau discret.

La fonction d'onde $|\Psi_E\rangle$ peut être développée sur les nouveaux états propres $|\bar{\varphi}_\nu\rangle$:

$$|\Psi_E\rangle = \cos \Delta(E) \left[\sum_\nu \frac{\operatorname{tg} \Delta_\nu(E)}{\Pi \bar{V}_{\nu E}} |\bar{\Phi}_\nu\rangle - |\alpha E\rangle \right]$$

où $\operatorname{tg} \Delta(E) = - \Pi \sum_\nu \frac{|\bar{V}_{\nu E}|^2}{E - E_\nu} = \sum_\nu \operatorname{tg} \Delta_\nu(E)$

$$|\bar{\Phi}_\nu\rangle = |\bar{\varphi}_\nu\rangle + \text{P.P.} \int \frac{\bar{V}_{\nu E'}}{E-E'} |\alpha E'\rangle \, dE'$$

Les quantités Δ_ν et $|\bar{\Phi}_\nu\rangle$ apparaissent dans l'étude de l'interaction du seul niveau $|\bar{\varphi}_\nu\rangle$ avec le continuum.

Si maintenant on considère la probabilité de transition à partir de l'état initial $|i\rangle$ vers l'état stationnaire $|\Psi_E\rangle$ on peut définir un paramètre de Fano q_ν pour chaque résonance prise séparément

$$q_\nu = \frac{\langle \bar{\Phi}_\nu | T | i \rangle}{\Pi \bar{V}_{\nu E} \langle \alpha E | T | i \rangle}$$

et le profil d'absorption pourra se mettre sous la forme

$$|\langle \Psi_E | T | i \rangle|^2 = \langle \alpha E | T | i \rangle^2 \cos^2 \Delta \left[\sum_\nu q_\nu \operatorname{tg} \Delta_\nu - 1 \right]^2 .$$

A cause des phénomènes d'interférences entre les différentes transitions associées aux états discrets $|\bar{\varphi}_\nu\rangle$, le profil d'absorption n'est pas égal à la somme des profils associés aux différentes résonances considérées de façon isolée :

$$|\langle \Psi_E | T | i \rangle|^2 \neq |\langle \alpha E | T | i \rangle|^2 \sum_\nu \cos^2 \Delta_\nu \left[q_\nu \operatorname{tg} \Delta_\nu - 1 \right]^2 .$$

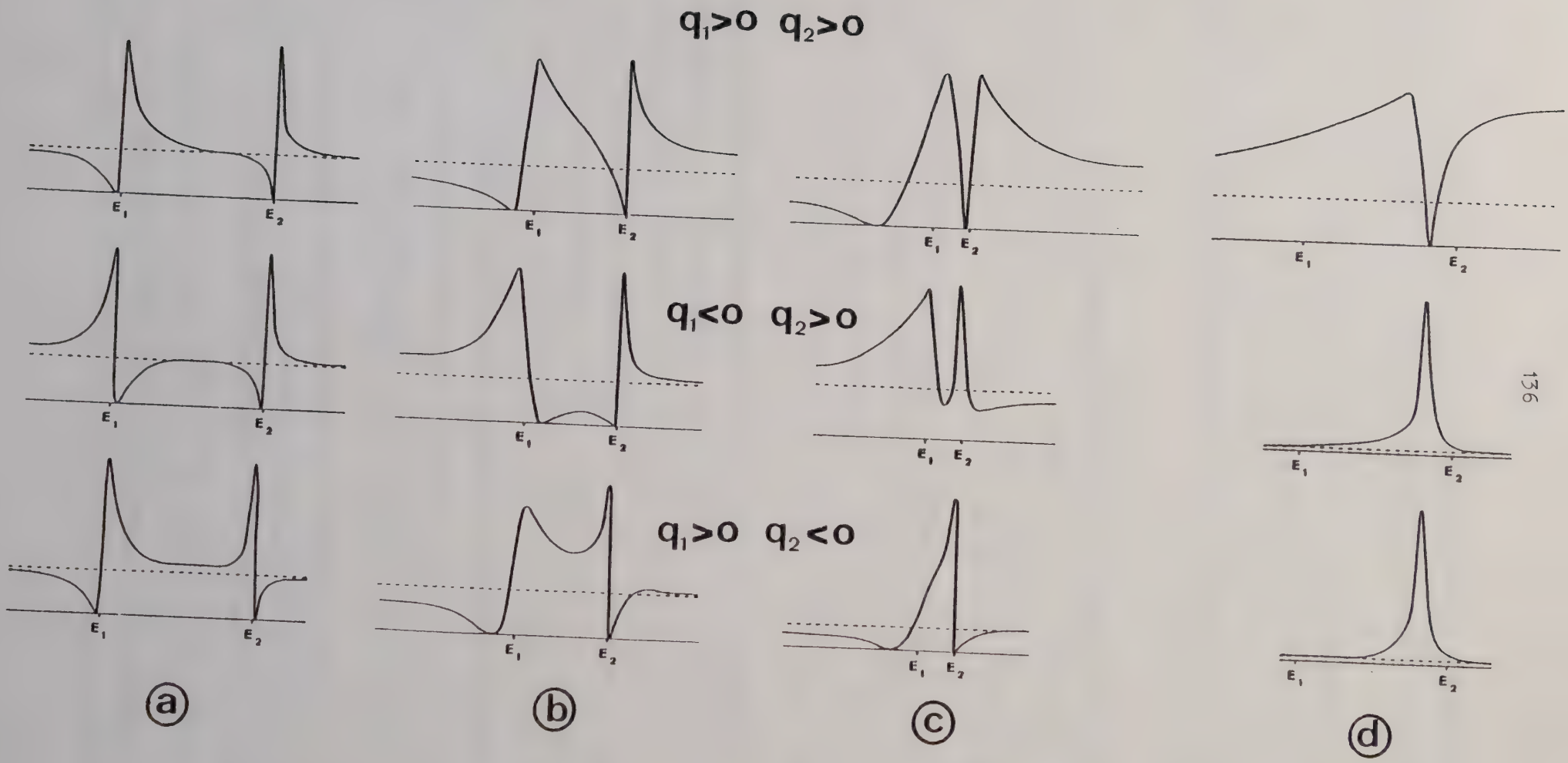


FIGURE III-8 : Dépendance du profil de deux raies couplées à un même continuum en fonction du paramètre $\frac{2|E_1-E_2|}{\Gamma_1+\Gamma_2}$.

Ces phénomènes d'interférences peuvent modifier profondément le profil réel comme le montre la figure III 8 .

Dans cet exemple on considère le couplage de deux états $|\varphi_1\rangle$ et $|\varphi_2\rangle$ d'énergie E_1 et E_2 avec le continuum $|\alpha E\rangle$, supposé sans structure et s'étendant infiniment loin en énergie ($F_{ij}(E) \sim 0$) .

Les deux résonances isolées sont caractérisées par leurs largeurs et leurs paramètres de Fano : $\Gamma_1 = 6{,}28 \times 10^{-4}$ $\Gamma_2 = 1{,}57 \times 10^{-4}$ $|q_1| = |q_2| = 1{,}59$.

Les trois cas étudiés se distinguent par les signes respectifs de q_1 et q_2 .

Lorsque $|E_1 - E_2| \gg \Gamma_1 + \Gamma_2$ (figure III 8a) $E_1 - E_2 \simeq 25(\Gamma_1+\Gamma_2)/2$ le profil réel est la juxtaposition des profils de Fano correspondant aux deux résonances supposées isolées ; en particulier entre les deux résonances, on observe un fond presque plat correspondant au continuum non perturbé.

Lorsque $|E_1 - E_2|$ décroit, le profil se modifie, tout particulièrement dans le domaine d'énergie compris entre E_1 et E_2 , où apparaissent des phénomènes d'interférence entre les deux voies de photoionisation associées aux résonances 1 et 2 : ainsi entre E_1 et E_2 ces interférences sont destructives dans le cas $q_1 < 0$ et $q_2 > 0$, et en revanche elles sont constructives pour $q_1 > 0$ $q_2 > 0$ et $q_1 > 0$ $q_2 < 0$.

Dans ces deux derniers cas les phénomènes d'interférence se traduisent par un élargissement apparent de la résonance E_1 , élargissement qui est observable même lorsque les deux états discrets sont relativement distants, comme dans la figure III 8b où $|E_1 - E_2| \sim 5\left(\frac{\Gamma_1+\Gamma_2}{2}\right)$.

Lorsque $|E_1 - E_2|$ devient comparable à $\frac{\Gamma_1+\Gamma_2}{2}$ (figue III 8c où

$|E_1 - E_2| \sim 1.5 \frac{\Gamma_1+\Gamma_2}{2}$)), le profil obtenu est fondamentalement différent du profil initial : pour $q_1 > 0$ $q_2 > 0$ on observe une résonance très large présentant en son centre un profil d'absorption et pour $q_1 > 0$ $q_2 < 0$ le spectre ne présente qu'une seule résonance de profil dissymétrique.

Ce profil ne peut cependant pas être assimilé à un profil de Fano de type classique, puisque l'intensité s'annule eux fois de part et d'autre du sommet.

Enfin lorsque $|E_1 - E_2|$ devient inférieur à $\frac{\Gamma_1+\Gamma_2}{2}$ (figure III 8d $|E_1 - E_2| \sim 0{,}25 \frac{\Gamma_1+\Gamma_2}{2}$) les profils observés à haute résolution ne comportent qu'une seule résonance très étroite apparaissant comme un trou d'absorption pour $q_1 > 0$ $q_2 > 0$ et comme une raie d'émission intense et très fine pour $q_1 \times q_2 < 0$.

Dans le cas de la figure III 8d l'analyse du profil de la raie laisserait à penser qu'il n'existe qu'un seul niveau discret très faiblement couplé au continuum. De plus pour $q_1 q_2 > 0$ on pourrait déduire que ce niveau ne peut pas être peuplé directement à partir du niveau fondamental ($q_{apparent} = 0$) .

Ainsi la figure III 8d montre clairement que pour $|E_1 - E_2|$ suffisament petit par rapport à $\frac{\Gamma_1+\Gamma_2}{2}$ il est impossible de déduire du profil observé des informations quantitatives (E_R, Γ ou q par exemple) concernant chacun des deux niveaux supposés isolés.

Seule une analyse globale du profil, c'est à dire une analyse des interactions entre les états discrets et le continuum, peut conduire à des résultats corrects.

Pour $|E_1 - E_2| \simeq 0{,}25 \dfrac{\Gamma_1+\Gamma_2}{2}$ (figure III 8d) le profil se compose d'une résonance très étroite que l'on pourrait associer dans une analyse qualitative rapide à un état très stable.

On peut comprendre l'origine de cet état stable en utilisant le formalisme de l'opérateur évolution et de la résolvante ainsi que la technique des opérateurs de projection [63] . Nous rappellerons ces résultats dans le cas d'un système de deux niveaux couplés à un continuum.

L'effet de l'interaction avec le continuum peut être pris en compte par un opérateur effectif H agissant uniquement sur l'espace des deux niveaux $|1\rangle$ et $|2\rangle$. Cet opérateur est représenté par une matrice à coefficients complexes :

$$E_n \, \delta_{nm} + F_{nm}(E) - \frac{i}{2} \Gamma_{nm}(E) + W_{nm} \qquad (m, n = 1, 2)$$

où $\Gamma_{nm}(E) = 2\Pi \, V_{nE} \, V_{mE}$, et W_{nm} représente l'interaction entre les niveaux $|n\rangle$ et $|m\rangle$.

Si V_{nE} varie lentement avec l'énergie, les états propres du système total sont obtenus par diagonalisation de la matrice ; les énergies de ces états dont données par les nombres complexes $E_\nu - i \dfrac{\Gamma_\nu}{2}$ où E_ν et Γ_ν représentent l'énergie et la demi-largeur de l'état.

Dans le cas où $\Gamma_{\nu_o} = 0$, l'état correspondant est un état stable.

Dans un système à deux niveaux la condition d'existence d'un état stable est donnée par la relation [64] :

$$\Gamma_{12} (E_1 + F_{11} - E_2 - F_{22}) - (W_{12} + F_{12}) (\Gamma_{11} - \Gamma_{22}) = 0$$

L'énergie E_R de cet état stable est égale à :

$$E_R = \frac{1}{2} (E_1 + F_{11} + E_2 + F_{22}) - \frac{F_{12}}{2\Gamma_{12}} (\Gamma_1 + \Gamma_2)$$

Si le couplage entre états discrets est négligeable ($F_{nm}(E) = 0$), les énergies des deux niveaux prennent des formes simples :

$$E \pm = \frac{1}{2} \left[E_1 + E_2 - i \frac{\Gamma_{11} + \Gamma_{22}}{2} \pm \delta \right]$$

avec $\delta^2 = (E_1 - E_2)^2 \left[1 - \lambda^2 - i\mu \right]$

où $$\frac{\Gamma_{11} + \Gamma_{22}}{2} = \lambda \mid E_1 - E_2 \mid$$

$$\Gamma_{11} - \Gamma_{22} = \mu \mid E_1 - E_2 \mid$$

Si le coefficient λ est très inférieur à l'unité, on obtient deux résonances discrètes dont les largeurs Γ_+ et Γ_- sont égales aux largeurs Γ_{11} et Γ_{22} des niveaux non perturbés.

Dans le cas de deux niveaux isolés de même largeur ($\Gamma_{11} = \Gamma_{22}$) , celles-ci ne varient pas tant que $|E_1 - E_2| > \frac{1}{2} (\Gamma_{11} + \Gamma_{22})$, c'est à dire tant que les deux niveaux ne se recouvrent pas.

Dans le cas où $|E_1 - E_2| \sim (\Gamma_{11} + \Gamma_{22})$, les largeurs spectrales des niveaux sont modifiées ; on obtient :

$$\Gamma_{\pm} = \Gamma_{11} \left[1 \pm \sqrt{1 - \left(\frac{E_1 - E_2}{\Gamma_{11}} \right)^2} \right] .$$

L'interaction stabilise un des niveaux ($\Gamma_- < \Gamma_{11}$) et augmente la vitesse d'ionisation de l'autre niveau. Dans le cas où $E_1 = E_2$, l'un des états devient alors stationnaire ($\Gamma_- = 0$) et l'autre s'ionise avec une vitesse deux fois plus grande que celle de chacun des niveaux supposés isolés.

Ainsi lorsque deux niveaux discrets ont des énergies très voisines et sont fortement couplés à un même continuum, le système total peut comporter un état très stable. Cette propriété est illustrée dans la figure III 8d, dans laquelle deux niveaux de largeur $\Gamma_1 \sim 6{,}28 \times 10^{-4}$ et $\Gamma_2 \sim 1{,}57 \times 10^{-4}$ et distants de $\Delta E = 10^{-4}$, sont couplés à un

même continuum, alors que le spectre résultant présente une résonance très fine dont la largeur est de l'ordre de $\Gamma_{obs} \simeq \Delta E / 10$.

Ce résultat est en parfait accord avec le calcul de la partie imaginaire des énergies du système à deux niveaux, puisque un calcul par diagonalisation montre que le système total comporte deux niveaux, dont les demi largeurs sont égales à $\frac{1}{2}\Gamma_- \sim 3{,}88 \times 10^{-4}$ et $\frac{1}{2}\Gamma_+ \sim 0{,}04 \times 10^{-4}$.

En résumé lorsque plusieurs niveaux sont couplés à un même continuum, l'effet du couplage peut modifier de façon importante les propriétés de chacun des niveaux supposés isolés. D'une part le couplage modifie la largeur et la position de chacun des niveaux. D'autre part des phénomènes d'interférences apparaissent dans le calcul de l'élément de matrice de l'opérateur transition et modifient le profil des raies.

Enfin nous avons supposé que le continuum ne possédait pas de structure, c'est à dire que V_{nE} et $\langle \alpha E \,|T|\, i \rangle$ étaient des fonctions lentement variables de l'énergie. Lorsque cette condition n'est pas vérifiée, c'est à dire lorsque V_{nE} ou $\langle \alpha E \,|T|\, i \rangle$ varient de façon importante quand l'énergie varie d'une quantité égale à $\pm \Pi \,|V_{nE_\varphi}|^2$ au voisinage de $E = E_\varphi$, le profil observé peut être très différent d'un profil de Fano.

En conséquence lorsque l'étude d'un spectre expérimental de photoionisation met en jeu plusieurs états discrets couplés à un même continuum, l'analyse quantitative du spectre peut s'avérer être délicate ; en effet lorsque le couplage est intense, les caractéristiques de chacune des résonances prises isolément peuvent être totalement erronées. Dans ce cas seule une analyse globale du spectre a un sens.

En conclusion on ne peut caractériser un profil expérimental observé dans un spectre de photoionisation que si le niveau étudié est faiblement couplé au continuum. Toutefois ce couplage devra être

suffisamment intense, de sorte que le taux d'ionisation du niveau perturbé soit compatible avec les conditions expérimentales d'observation.

D 2. PROFILS DE FANO DANS UN SPECTRE DE PHOTOIONISATION

Pour étudier l'effet Stark dans les atomes alcalins, on peut considérer comme hamiltonien d'ordre zéro l'hamiltonien Stark de l'atome d'hydrogène et traiter comme une perturbation soit le potentiel central représentant l'interaction entre l'électron optique et les électrons du coeur, soit l'interaction spin-orbite dans le cas d'alcalins suffisamment lourds.

Ainsi que nous venons de le voir, la mise en évidence expérimentale d'un profil de Fano nécessite deux conditions :

- l'existence d'un ou plusieurs continuums dans lesquels baigne un niveau discret

- une interaction "d'intensité modérée" entre ce niveau discret et le continuum.

Compte tenu de ces deux impératifs, l'observation de tels profils ne pourra se faire ni dans la région I en raison de l'absence de continuum, ni dans la région III en raison de l'absence de niveaux discrets (voir figure I 6c), mais uniquement dans la région II .

Comme il existe un grand nombre d'états discrets au voisinage de la limite d'ionisation classique, seule une étude à haute résolution pourra mettre en évidence des profils de raies dissymétriques.

De tels profils ne peuvent exister que si les niveaux discrets ne se perturbent pas mutuellement, c'est à dire que leur écart en énergie est supérieur à leur élargissement spectral, qui est dû à leur interaction avec les états du continuum.

Si les vitesses d'ionisation par effet tunnel des niveaux situés près de $E = 0$ ne sont plus négligeables, on ne peut plus supposer que l'élément de matrice V_E varie peu avec l'énergie de sorte que les profils obtenus ne sont plus asymétriques.

Enfin la mise en évidence expérimentale d'un profil de Fano n'est possible que si l'intensité de couplage discret - continuum est suffisante.

Si le couplage est de nature électrostatique, il sera particulièrement important pour les états $m_\ell = 0$.

Si le couplage est dû à l'interaction spin-orbite, il sera significatif essentiellement dans les spectres $|m_\ell| = 0$ ou 1 , parce qu'ils mettent en jeu des états P ($\ell = 1$) .

Compte tenu de toutes ces conditions, nous avons recherché de tels profils dans deux expériences,l'une effectuée sur le rubidium et l'autre sur le sodium.

Atome de rubidium :

Le principe de l'expérience est le même que celui décrit précédemment. Une excitation Π , en présence d'un champ F , porte les atomes dans les états $|m_\ell| = 0$ et 1 ($|m_j|$ est le bon nombre quantique).

Près de la limite d'ionisation classique ($E \sim - E_c$) , les spectres de photoionisation obtenus, aussi bien en excitation Π que σ , sont très fournis : ils se composent de raies très larges, qui sont en fait des structures non résolues, et de raies isolées et très fines dont la largeur spectrale est de l'ordre de 200 MHz .

Ces raies très fines, qui correspondent à des niveaux très stables dans le modèle de l'atome d'hydrogène, n'ont pu être observées

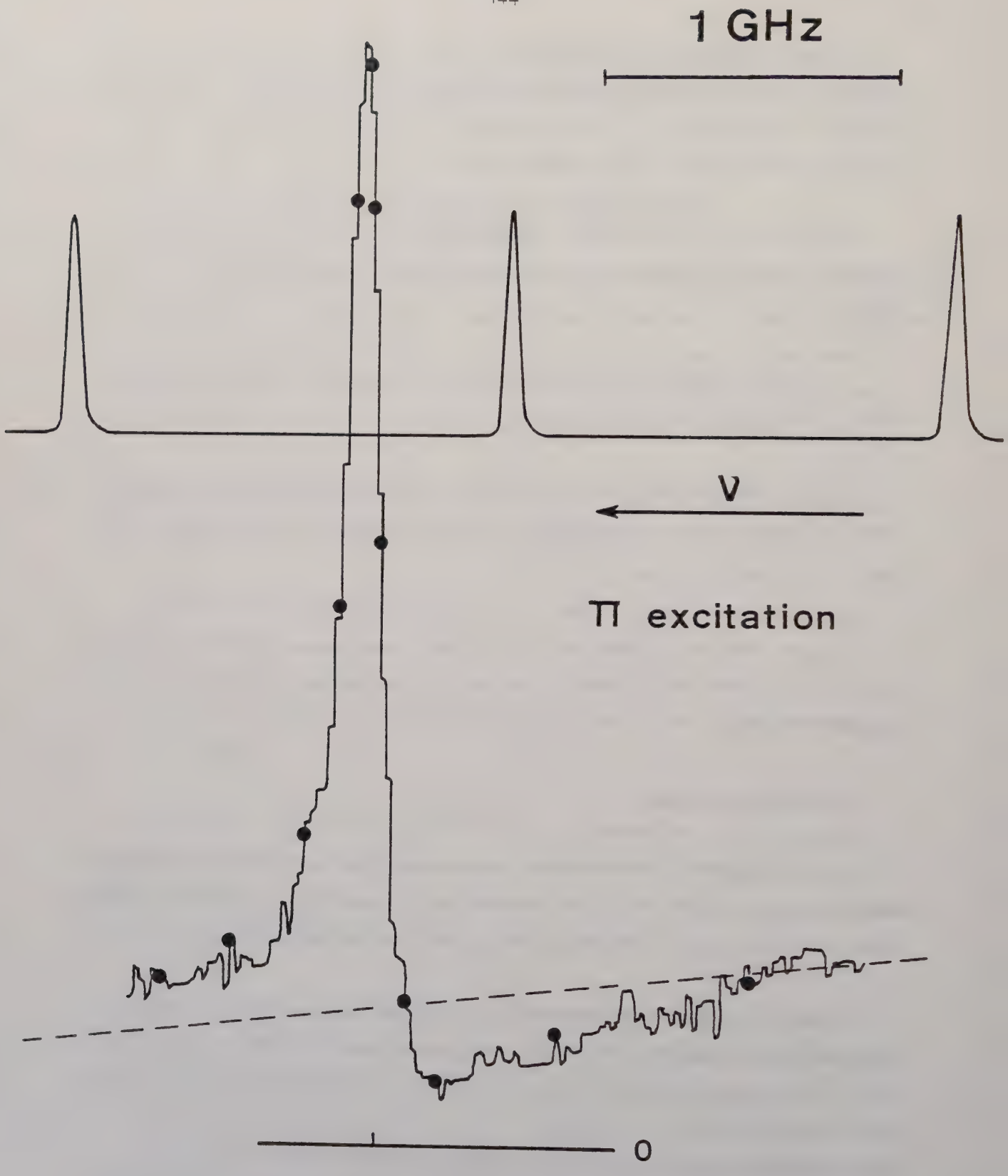


FIGURE III-9 : Profil de Fano observé dans le spectre de photoionisation du rubidium ($F = 158$ V/cm, $E = -76$ cm^{-1}) . Les points sur la courbe expérimentale représentent le profil de Fano théorique obtenu avec les paramètres $q=3,3$ et $\Gamma=0,13$ GHz (même remarque pour les courbes des figures III-10, III-11 et III-12).

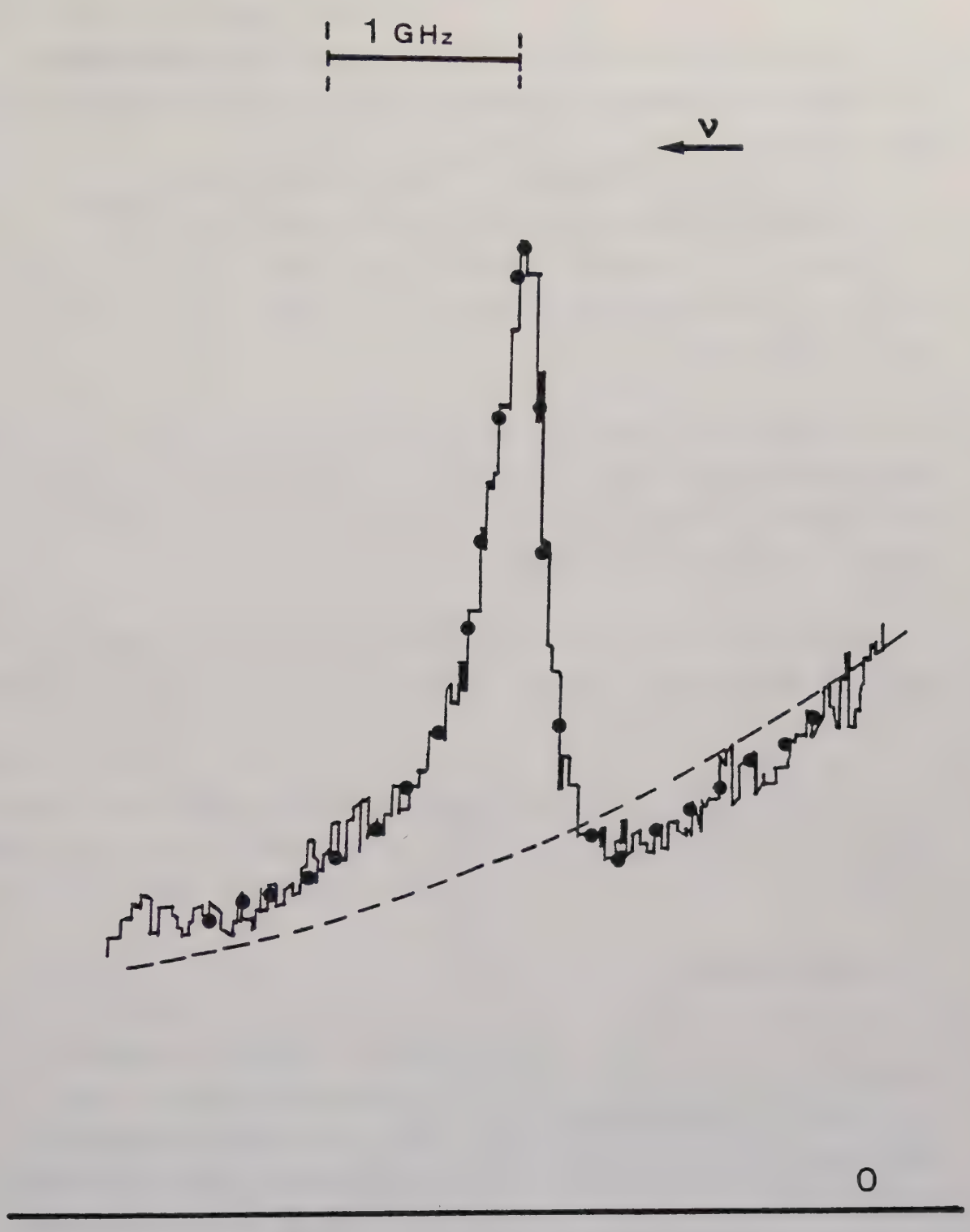


FIGURE III-10

Profil de Fano observé dans le spectre de photoionisation du rubidium ($F = 606$ V/cm , $E = -140$ cm^{-1} , $q = 3,4$ et $\Gamma = 0,26$ GHz).

que parce qu'il existe d'abord un couplage entre ces niveaux discrets et le continuum et qu'ensuite nous avons utilisé les techniques de très haute résolution.

En effet l'utilisation des techniques de basse résolution ($\Delta\nu \simeq 0{,}3\ cm^{-1}$) n'aurait permis de voir dans cette région spectrale que des structures non résolues (raies larges), mais en aucun cas des raies fines.

Une exploration très lente de ces profils de raies fines, dont les largeurs devront être supérieures à la largeur spectrale du laser, doit apporter la preuve expérimentale de cette interaction, et ceci à travers l'observation d'asymétries dans leurs profils.

Les figures III 9 et 10 montrent deux exemples de profils asymétriques observés sur l'atome de rubidium au voisinage de $E = -76\ cm^{-1}$ et de $E = -140\ cm^{-1}$ [65].

On notera le parfait accord entre les profils expérimentaux et les profils de Fano théoriques obtenus avec les paramètres $q=3.3$ $\Gamma = 0.13$ GHz (figure III 9) et $q = 3{,}4$ $\Gamma = 0{,}26$ GHz (figure III 10).

Atome de sodium :

Dans cette expérience, qui sera exposée en détail au chapitre suivant, les atomes de sodium sont portés dans l'état $m_\ell = 0$ par une double excitation optique. Compte tenu de la largeur spectrale du laser ionisant ($\Delta\nu \simeq 0{,}2\ cm^{-1}$) la recherche de profils de Fano ne pourra se faire cette fois-ci qu'au voisinage de la limite d'ionisation en champ nul ($E = 0$).

En effet dans cette région spectrale, le spectre Stark du sodium comporte très peu de résonances dont les largeurs sont de l'ordre de 2 à $3\ cm^{-1}$. Ces résonances isolées correspondent en fait aux niveaux très stables $n_1 = n - 1$ du modèle hydrogénoïde.

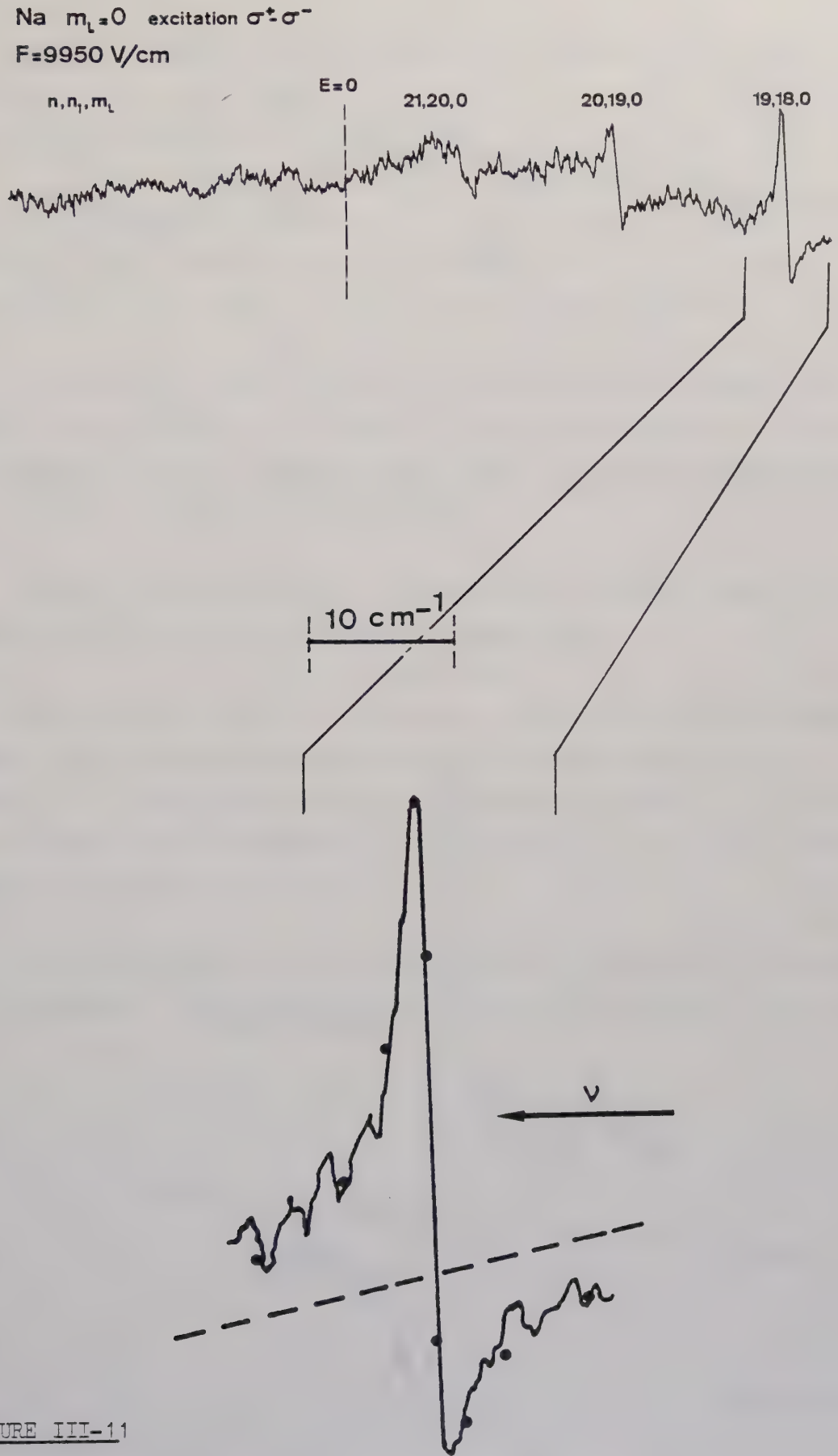


FIGURE III-11

Profil de Fano observé dans le spectre de photoionisation du sodium ($q = 1,7$, $\Gamma = 2,4$ cm^{-1}).

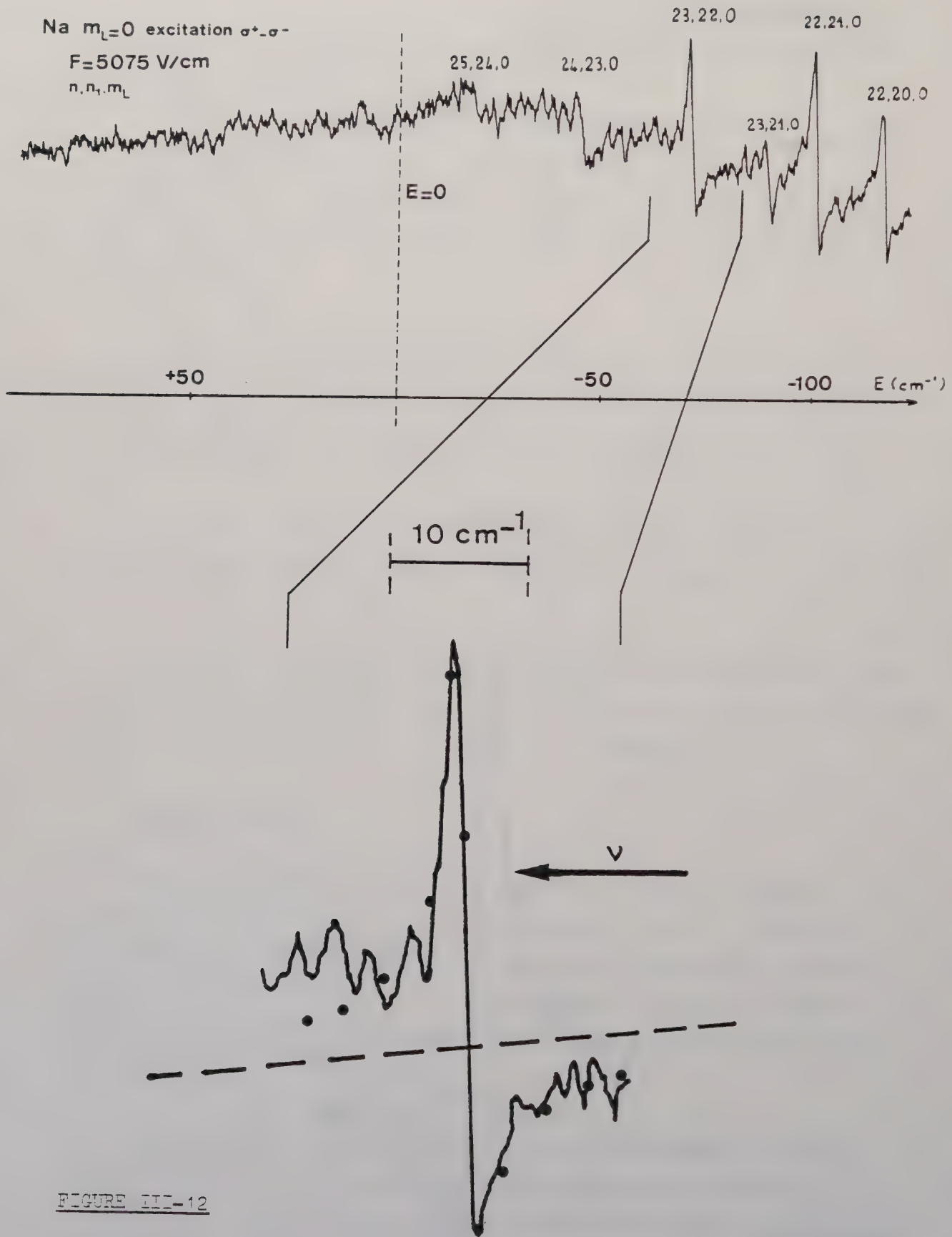


FIGURE III-12

Profil de Fano observé dans le spectre de photoionisation du sodium ($q = 1,5$, $\Gamma = 1,6$ cm^{-1}).

Les figures III 11 et 12 montrent deux enregistrements assez typiques faits au voisinage de $E \sim -100$ cm^{-1} et pour des champs $F = 9950$ V/cm et 5075 V/cm [66].

De la même façon que dans le rubidium, on trouve un bon accord entre les profils expérimentaux et théoriques [$q = 1,7$ $\Gamma = 2,4$ cm^{-1} (figure III 11) et $q = 1,5$ $\Gamma = 1,6$ cm^{-1} (figure III 12)]

En conclusion on peut dire que les profils de Fano obtenus avec deux atomes différents sont la manifestation expérimentale d'une interaction entre certains niveaux discrets Stark et le continuum dans lequel ils baignent tel que cela a été suggéré.

Cependant il est difficile de déterminer la nature exacte de cette interaction car la forme du profil n'en dépend pas.

Dans le cas du rubidium, les profils observés sont fins et probablement dus à l'interaction spin-orbite ; en effet des calculs ont montré que l'interaction spin-orbite mélangeait fortement (70% - 30%) au voisinage des anticroisements localisés près de $E = E_c$ les fonctions d'ondes de m_ℓ différents.

En revanche dans le cas du sodium, les profils observés sont larges et certainement dus au caractère non coulombien du potentiel d'interaction.

E - STABILISATION DE CERTAINS NIVEAUX STARK DE L'ATOME DE RUBIDIUM

A notre connaissance, les seules structures Stark stables ($F<F_c$), qui ont été étudiées expérimentalement à basse résolution et dans des conditions de polarisation bien déterminées, sont celles du lithium et du césium (spectres $|m_\ell| = 0$ et 1 pour le lithium et $|m_j| = 1/2$ pour le césium [36,38]); par contre quelques enregistrements en régime sur-critique à basse résolution ont été faits sur l'atome de rubidium en polarisation Π et σ [62,67]. En particulier des tentatives d'identification des raies, basées sur le modèle hydrogénoïde, ont été faites dans le cas du spectre Π du rubidium soumis à un champ $F = 2189$ V/cm [67].

Dans les alcalins lourds l'interaction spin-orbite joue un grand rôle ; elle explique ainsi l'existence de seuils d'ionisation multiples dans le spectre $m_\ell = 0$ des niveaux moyennement excités ($n \sim 20$) de l'atome de rubidium [68] ; en effet dans la région $n = 20$, l'interaction spin-orbite est de l'ordre de 12 GHz pour le rubidium et à peine 600 MHz pour le sodium ce qui justifie ainsi son rôle négligeable dans le cas d'un alcalin léger.

Comme on disposait de techniques à très haute résolution, il nous a semblé intéressant d'étudier, vers $n = 20$, la région située près de la limite d'ionisation classique. Pour cela, nous avons entrepris une étude systématique de ce domaine d'énergie avec d'abord l'idée d'identifier tous les niveaux d'énergie observés et ensuite l'espoir de mettre en évidence une manifestation particulière de l'interaction spin-orbite.

E 1. DIAGRAMME DES NIVEAUX STARK DU RUBIDIUM

Les atomes de rubidium sont excités en présence d'un champ continu F_0 auquel on peut superposer éventuellement un champ pulsé pour détecter les niveaux stables en présence de F_0.

La plage d'énergie explorée se situe entre $E = -281\ cm^{-1}$ et $-287\ cm^{-1}$ et l'intensité du champ électrique F_0 varie de 2050 à 2250 V/cm ; afin de bien suivre l'évolution des niveaux d'énergie, la variation de F_0 se fait en moyenne par pas de 10 V/cm.

Les diagrammes d'énergie en polarisation Π et σ sont représentés sur les figures III 13 et III 14. Compte tenu de la petitesse de l'étendue étudiée (à comparer avec l'étendue de $100\ cm^{-1} \times 6000\ V/cm^{-1}$ dans le cas du césium [38]) et du nombre très élevé de résonances Stark, il nous a été extrêmement difficile d'identifier ces niveaux d'énergie. Toutefois les résultats expérimentaux permettent d'attribuer le niveau A à un niveau provenant de la multiplicité $n = 21$.

C'est en se déplaçant sur les niveaux A ou B que nous avons observé une anomalie dans la vitesse d'ionisation des atomes ; en effet pour des valeurs bien précises de E et de F (notées par des astérisques sur les courbes A et B), les ions n'arrivent plus groupés sur le détecteur (dispersion des temps d'arrivée Δt inférieure à 100 ns) mais de façon très dispersée ($\Delta t > 10\ \mu s$) ce qui traduit une très grande stabilité de l'atome dans le champ.

En enregistrant le spectre correspondant à l'aide d'une détection à porte (largeur de la porte du compteur $\sim 0.2\ \mu s$), le phénomène observé se manifestait par une très forte diminution de l'intensité de la raie que l'on a tout d'abord attribué à une diminution de la probabilité d'excitation des états A ou B [69]. Cette hypothèse nous a semblé plausible dans la mesure où cette situation arrivait toutes les fois qu'il y avait un anticroisement entre deux niveaux $|a\rangle$ et $|b\rangle$

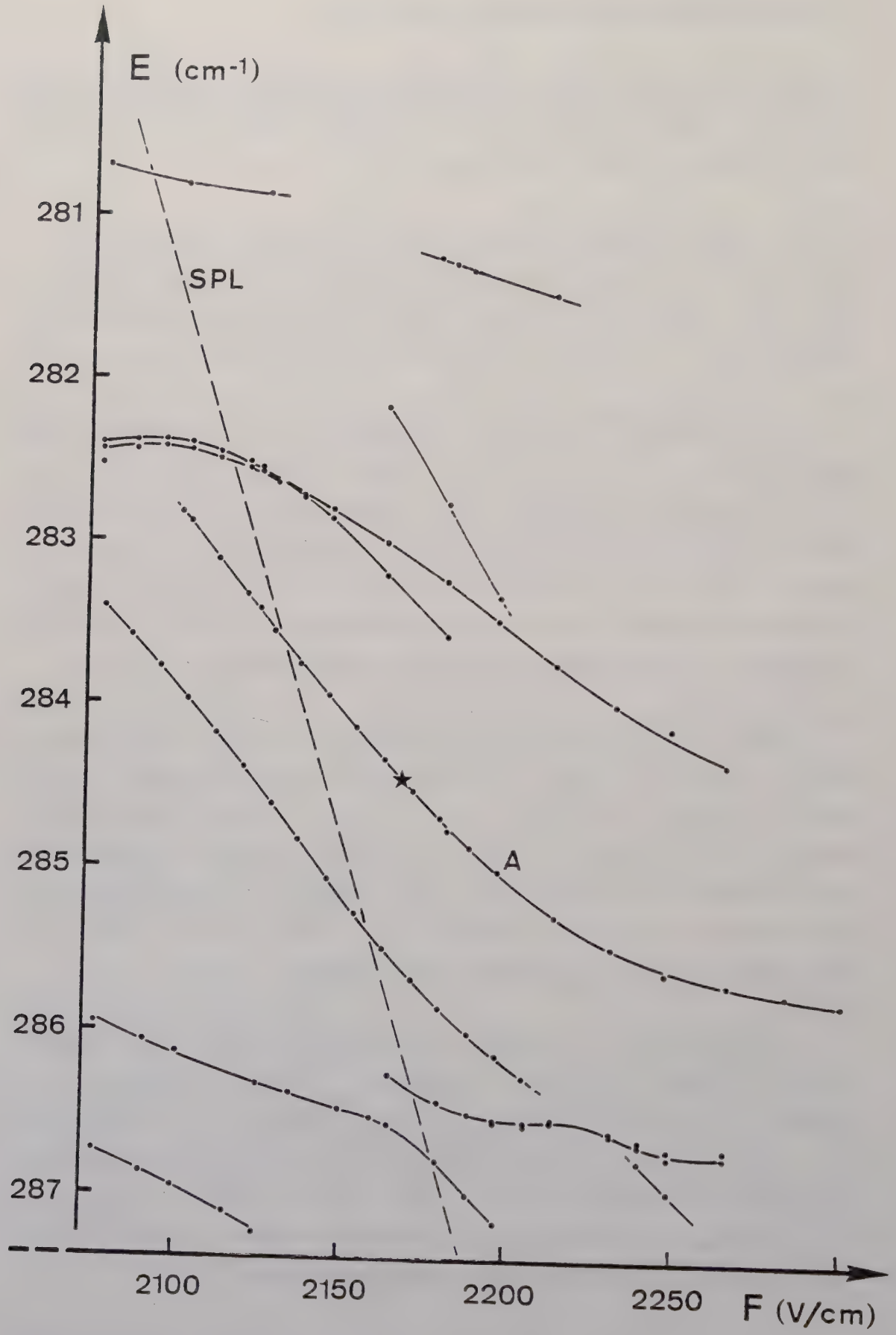


FIGURE III-13 : Niveaux d'énergie de l'atome de rubidium en fonction du champ électrique appliqué (excitation II).

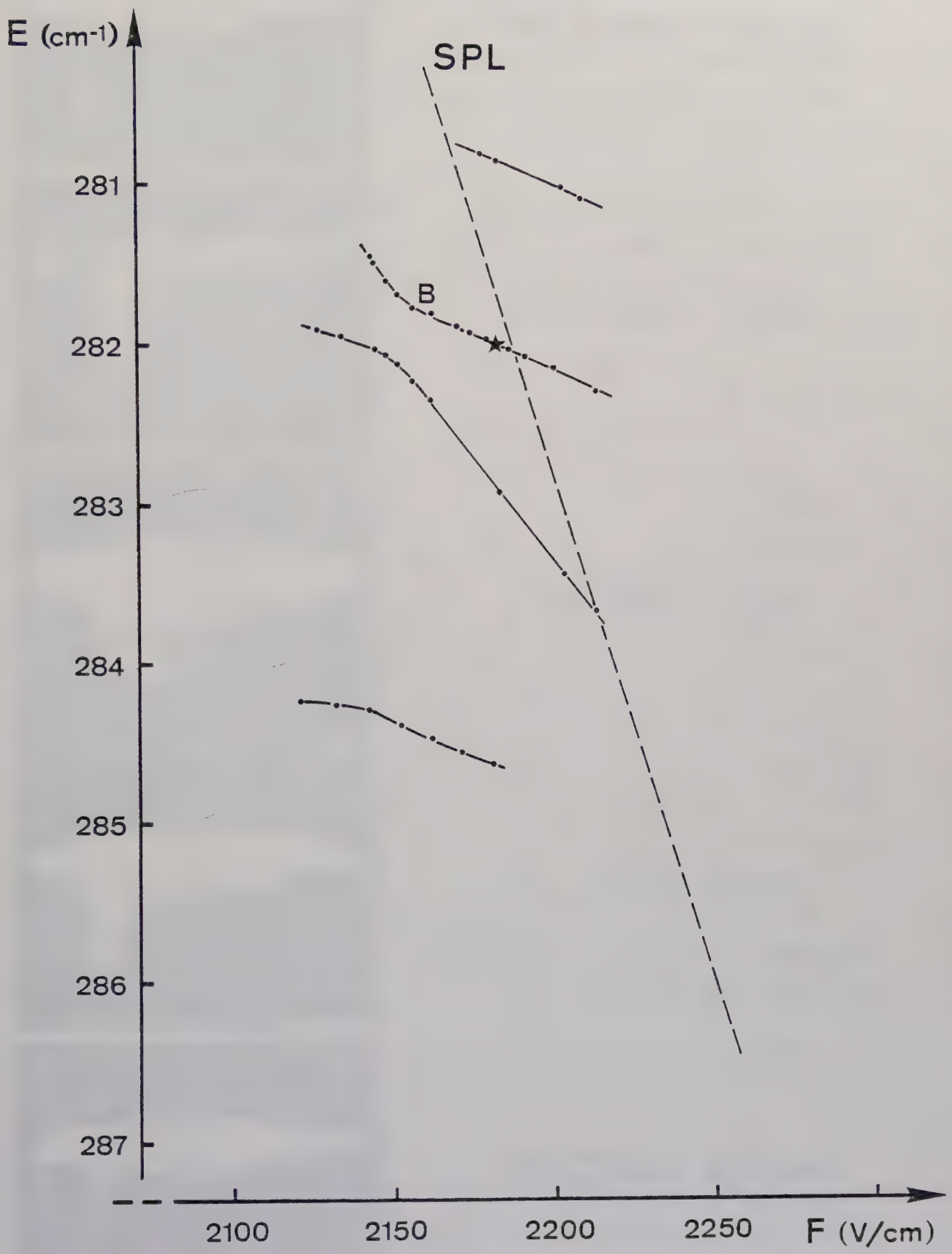


FIGURE III-14 : Niveaux d'énergie de l'atome de rubidium en fonction du champ électrique appliqué (excitation σ).

couplés d'abord tous les deux à un même niveau de départ $|i\rangle$ (les forces d'oscillateurs des transitions $|i\rangle \rightarrow |a\rangle$ et $|i\rangle \rightarrow |b\rangle$ sont supposées presque égales loin de l'anticroisement) puis ensuite couplés entre eux par une interaction W dont les éléments non diagonaux W_{ab} sont non nuls.

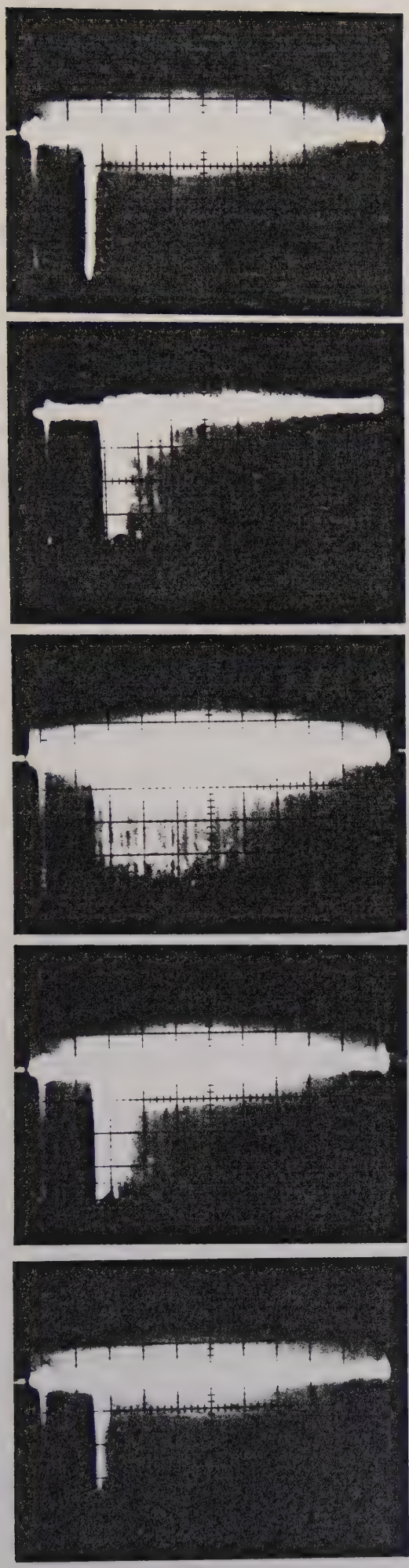
Au niveau de l'anticroisement les fonctions d'ondes des états perturbés sont des combinaisons linéaires symétrique et antisymétrique des fonctions d'ondes non perturbées $|a\rangle$ et $|b\rangle$ soit :

$$\begin{cases} |\Psi_+\rangle = \frac{1}{\sqrt{2}} [|a\rangle + |b\rangle] \\ |\Psi_-\rangle = \frac{1}{\sqrt{2}} [-|a\rangle + |b\rangle] \end{cases} .$$

La probabilité d'exciter l'état $|\Psi_-\rangle$ est nulle au voisinage de l'anticroisement ($\langle i|T|\Psi_-\rangle = \frac{1}{\sqrt{2}} [\langle i|T|b\rangle - \langle i|T|a\rangle] = 0$ où T représente l'opérateur transition dipolaire électrique).

En fait, dans notre cas, la probabilité d'excitation de l'état A (ou B) n'était pas nulle car en superposant au champ continu F_0 , et après l'impulsion laser, un champ pulsé ΔF ($\Delta F \sim 10$ V/cm) on obtenait cette fois-ci un signal d'ionisation intense. L'observation de l'arrivée des ions sur l'écran de l'oscilloscope montre très bien cette augmentation de la durée de vie que nous nous proposons d'étudier dans le paragraphe suivant.

En résumé, c'est la probabilité d'ionisation des états A et B , et non pas la probabilité d'excitation de ces états, qui s'annule pour une valeur bien précise $F = F_0$.



0.5 µs per interval

F = 2186 V/cm

F = 2172 V/cm

F = 2168 V/cm

F = 2163 V/cm

FIGURE III-15

F = 2143 V/cm

Série d'oscillogrammes représentant la dispersion du temps d'arrivée des ions sur le détecteur.

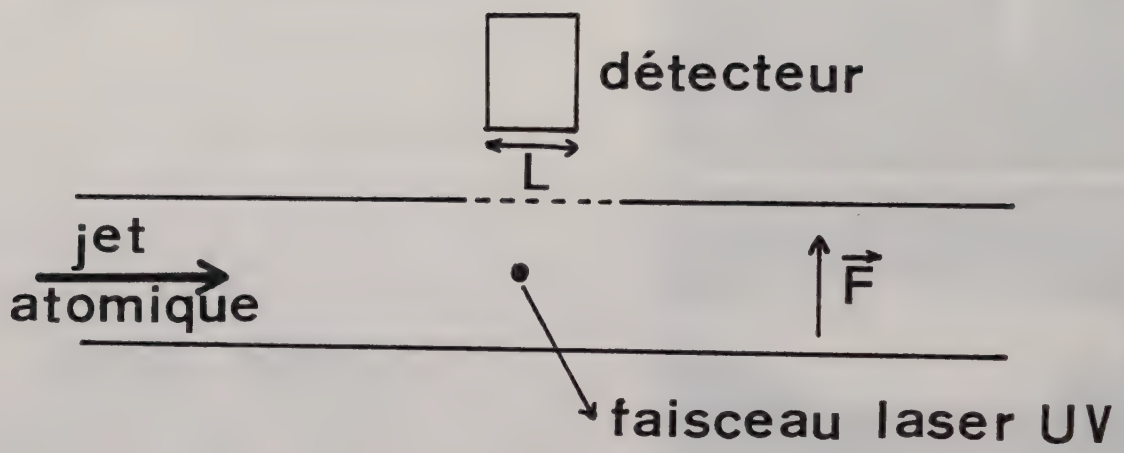


FIGURE III-16

E 2. MESURE DE LA DUREE DE VIE A L'IONISATION

La figure III 15 montre une série d'oscillogrammes des temps d'arrivée des ions sur le détecteur obtenus pour différentes valeurs de F et E(F) dans le cas de la courbe A ; on peut remarquer que les durées de vie à l'ionisation sont del'ordre de quelques microsecondes, ce qui correspond à des largeurs de raies variant de quelques centaines de kHz à quelques MHz. Ces variations ne peuvent pas être observées en raison de la largeur Doppler résiduelle $\Delta\nu$ due à la collimation C du jet atomique ($C \sim 100$ et $\Delta\nu \simeq 40$ MHz).

D'autre part, la mesure par l'observation des ions des durées de vie à l'ionisation relativement longues se heurte à deux autres limites. Tout d'abord la durée de l'impulsion laser ($\sim 10^{-7}$ s) qui fait en sorte que seules les durées de vie supérieures à quelques 100×10^{-9} s soient mesurables. La seconde contrainte est due au temps de vol des atomes du jet (fig. III 16) : en effet l'atome de rubidium excité ne doit pas s'ioniser hors du champ du détecteur ce qui, compte tenu de la vitesse $v \sim 500$ m/s de l'atome et de la dimension moyenne $L \sim 10$ mm du détecteur, impose une limite supérieure $\tau_{Max} \sim \frac{L}{v}$ de l'ordre de 20 µs à nos mesures. Les atomes excités, dont la durée de vie à l'ionisation est supérieure à 20 µs, ne sont pas détectés car ils s'ionisent hors du champ du multiplicateur d'électrons (ils parcourent plus de 10 mm et sont de ce fait hors du champ de détection).

C'est ainsi que seules les durées de vie se trouvant dans la plage [0,2 µs - 20 µs] pourront être mesurées par cette méthode. Ces mesures se font en deux étapes :

- Dans un premier temps et presque immédiatement après l'excitation laser (soit avec un retard de moins de 100×10^{-9} s), on superpose au champ continu un créneau de champ électrique ; cette impulsion, dont l'intensité moyenne est de l'ordre de 10 V/cm, ionise, avec un taux égal à A_i' , tous les atomes excités en un temps beaucoup plus court que leur durée de vie radiative ou leur temps de vol.

Le nombre total d'ions ainsi comptés donne à peu près la population N_0 de l'état excité.

- Dans un deuxième temps, on supprime le champ électrique pulsé et on mesure le nombre d'ions n_t qui arrivent sur le détecteur durant l'intervalle de temps t après l'excitation laser.

De ces deux expériences donnant N_0 et n_t, on peut déduire la vitesse d'ionisation des atomes.

En effet, en présence d'un champ continu F, le niveau excité se dépeuple soit par ionisation avec une vitesse A_i soit par désexcitation radiative avec une vitesse A_r ; on peut donc écrire :

$$- dN = NA_r dt + NA_i dt$$

soit une population du niveau à l'instant t égale à :

$$N(t) = N(0) \exp [- (A_r + A_i)t]$$

où $N(0)$ représente le nombre total d'atomes portés dans l'état excité. Le nombre d'ions arrivant sur le détecteur pendant l'intervalle de temps t est donné par

$$n_t = \int_0^t N(t)\, A_i\, dt = N(o) \times \frac{A_i}{A_i + A_r} \left[1 - e^{-(A_r + A_i)t}\right]$$

Dans le cas où $(A_r + A_i)t < 1$, l'expression ci-dessus se simplifie pour s'écrire :

$$n_t \simeq N(0)\, A_i t \ .$$

La première expérience permet de mesurer la population initiale $N(0)$ de l'état excité. Soit ξ le retard entre l'impulsion d'excitation laser et l'application du créneau de champ électrique et A_i' la vitesse d'ionisation des atomes en présence du champ continu et du champ pulsé

($\xi = 10^{-7}$ s). La population de l'état excité à l'instant ξ est donnée par

$$N(\xi) = N(0) \exp\ [-(A_r + A_i)\xi] .$$

Dès l'application du champ pulsé tous les atomes sont ionisés à la vitesse A_i' très supérieure à A_r ; à l'instant t la population du niveau excité vaut

$$N(t) = N(\xi) \exp\ [-(A_r + A_i')t] \simeq N(\xi)e^{-A_i't}$$

Quant au nombre total d'ions comptés par le détecteur, il est donné par :

$$n_0 = \int_0^\infty N(t)A_i' \, dt \simeq N(\xi) \simeq N(0) \qquad ((A_r + A_i)\xi \ll 1).$$

Ainsi donc le taux d'ionisation A_i se déduit simplement de ces deux expériences ; sa valeur est donnée par :

$$A_i = \frac{n_t}{n_0 \cdot t} .$$

Le tableau II donne les valeurs numériques des vitesses d'ionisation obtenues dans le cas des niveaux A et B ; les figures III 17 et III 18 en donnent une représentation graphique.

On peut remarquer que les largeurs de ces deux courbes sont comparables, soit approximativement 2 V/cm, ce qui correspond à un déplacement de niveau de l'ordre de 1 GHz. Il est à noter que ce comportement anormal dans la durée de vie à l'ionisation n'a pu être observé que parce que les variations du champ continu appliqué étaient à peine de quelques V/cm ce qui nous a ainsi permis de faire une analyse très fine des niveaux d'énergie.

Un tel phénomène n'aurait pas pu être observé à basse ou moyenne résolution non pas à cause de la largeur spectrale du rayonnement mais parce que les variations ΔF du champ électrique, qui sont en général

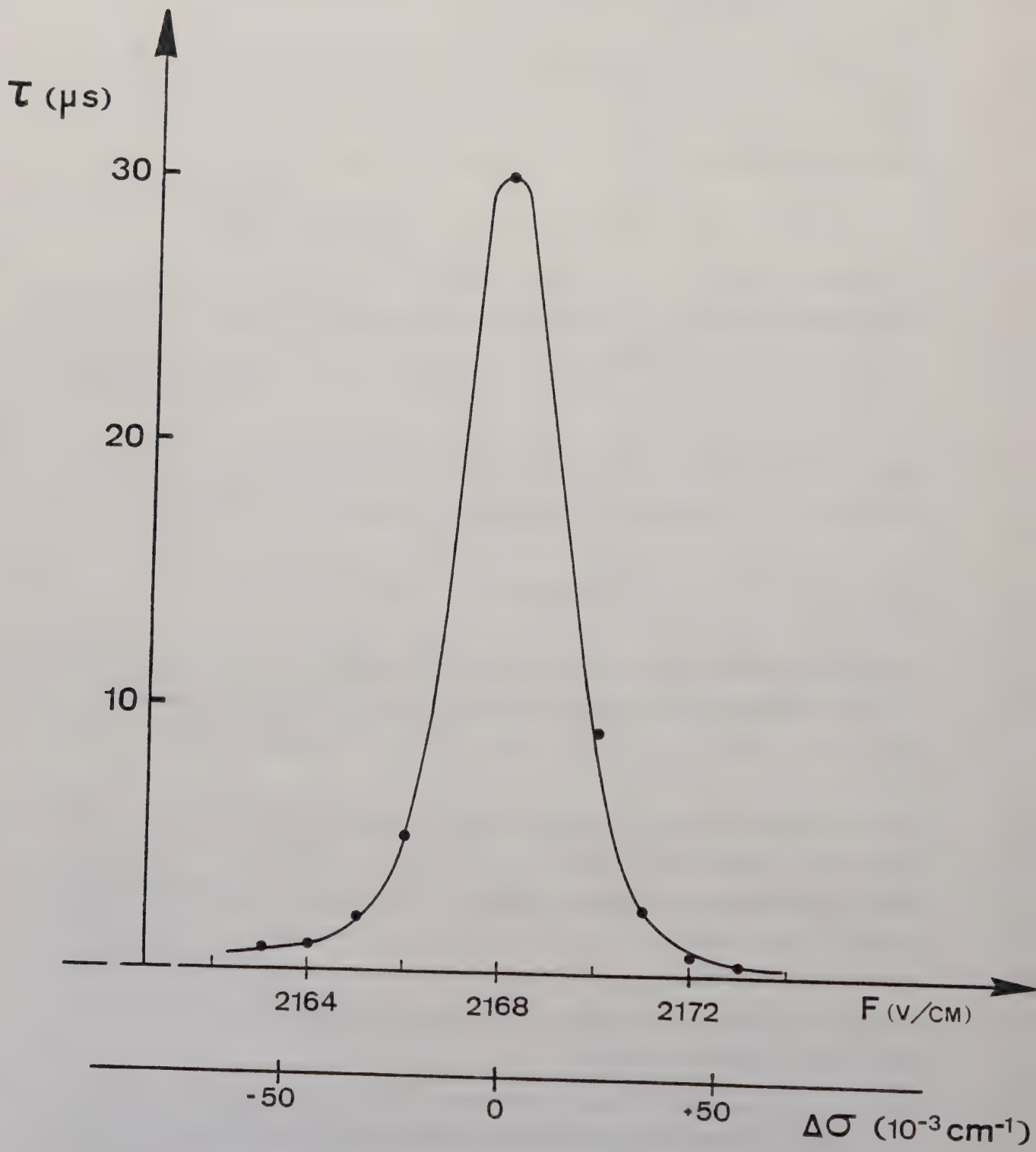


FIGURE III-17

Dépendance en champ électrique de la durée de vie à l'ionisation du niveau A .

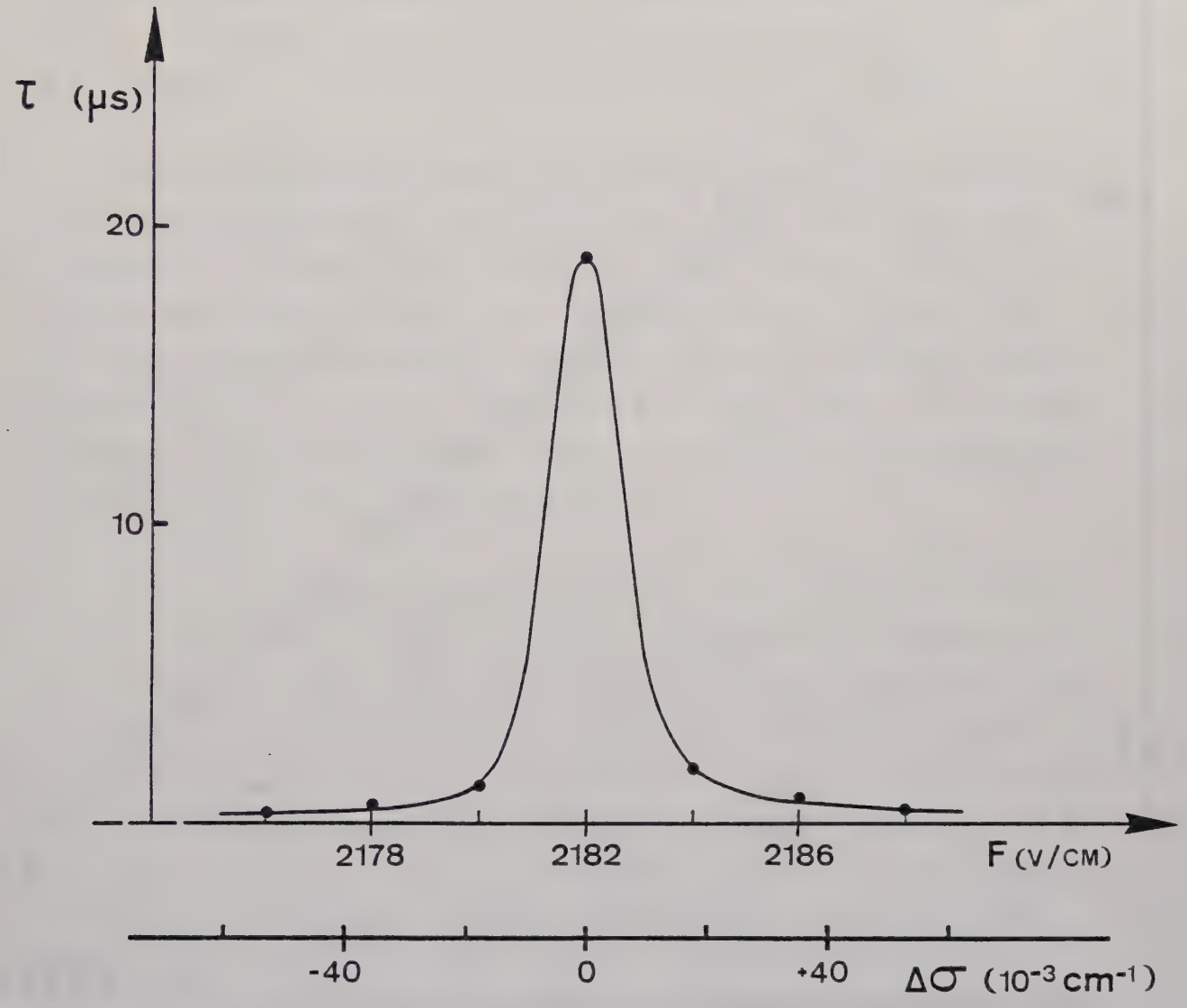


FIGURE III-18

Dépendance en champ électrique de la durée de vie à l'ionisation du niveau B .

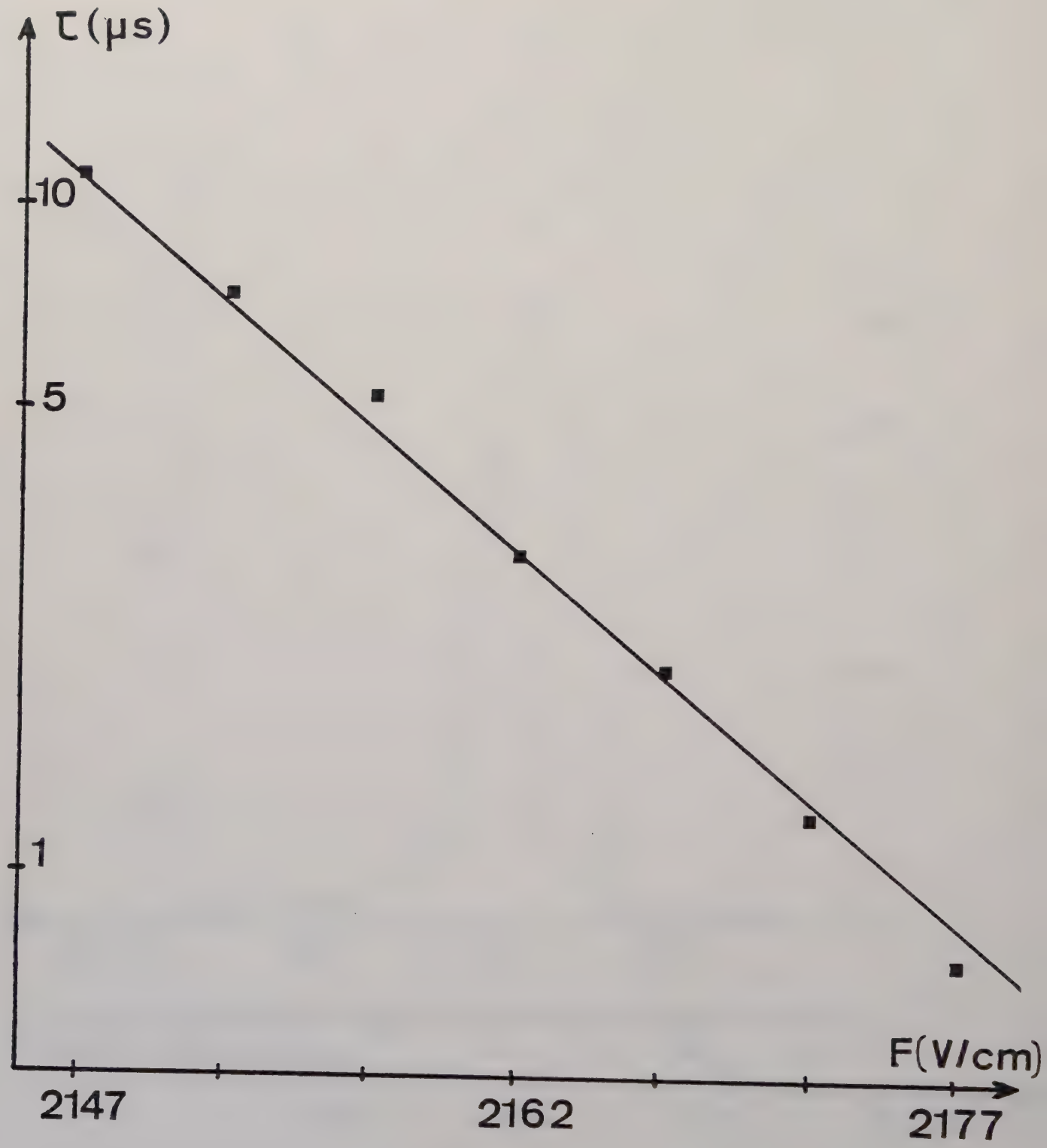


FIGURE III-19

Durée de vie à l'ionisation en fonction du champ électrique d'un niveau ne présentant pas d'anomalies.

Les points s'alignent sur la courbe d'équation $\tau \simeq 3 \times 10^{74} e^{-0,085F}$ (F(V/cm) et τ(s))

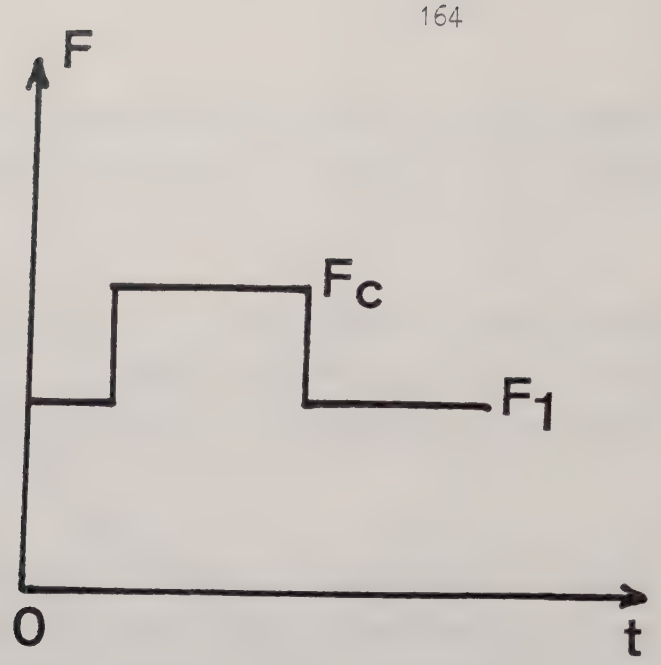
adaptées à la largeur spectrale $\Delta\nu$ du rayonnement excitateur ($\Delta F \sim 50$ à 100 V/cm pour $\Delta\nu \sim 0{,}5\ cm^{-1}$), auraient été trop grandes.

A titre de comparaison avec les figures III 17 et III 18 on a représenté sur la figure III 19 une évolution normale de la durée de vie à l'ionisation dans le cas d'un niveau situé près de $E \simeq -285\ cm^{-1}$.

Dans un premier temps nous avons pensé que cette stabilité locale de l'atome, observée aussi bien en polarisation Π que σ, était probablement due au fait que ces niveaux A ou B étaient couplés à des niveaux pratiquement stables dans le champ appliqué F ; c'est ainsi que, pour trouver éventuellement certains niveaux qu'on n'aurait pas vu dans le champ F, nous avons superposé à ce champ un champ pulsé d'une intensité moyenne de 1000 V/cm : aucun autre niveau n'a pu être mis en évidence dans la région spectrale étudiée.

Nous avons également envisagé la possibilité d'un transfert radiatif résonnant entre le niveau A (ou B) et deux niveaux symétriques de A (ou B) comme cela a été observé dans des collisions résonnantes entre atomes de Rydberg [70]. Dans cette expérience faite sur un jet atomique de sodium très intense, il s'effectue lors de la collision résonnante un transfert irréversible des atomes de l'état $|nS\ ,\ m_\ell = 0\rangle$ aux états $|np\ ,\ m_\ell = 0\rangle$ et $|(n-1)p\ ,\ m_\ell = 0\rangle$; en effet si les atomes sont excités en présence d'un champ F_1, ils seront portés dans l'état $|nS\ ,\ m_\ell = 0\rangle$ (point a de la figure III 20). Portons ensuite le champ à la valeur $F = F_c$, valeur pour laquelle les niveaux $|np\ ,\ m_\ell = 0\rangle$ et $|(n-1)p\ ,\ m_\ell = 0\rangle$ sont symétriques du niveau $|nS\ ,\ m_\ell = 0\rangle$; les atomes passent alors de l'état a à l'état b ($|nS\ ,\ m_\ell = 0\ ,\ F = F_c\rangle$).

Si la durée d'application du champ $F = F_c$ est suffisamment longue (~ 2 à 3 μs), les atomes dans l'état b subiront alors des



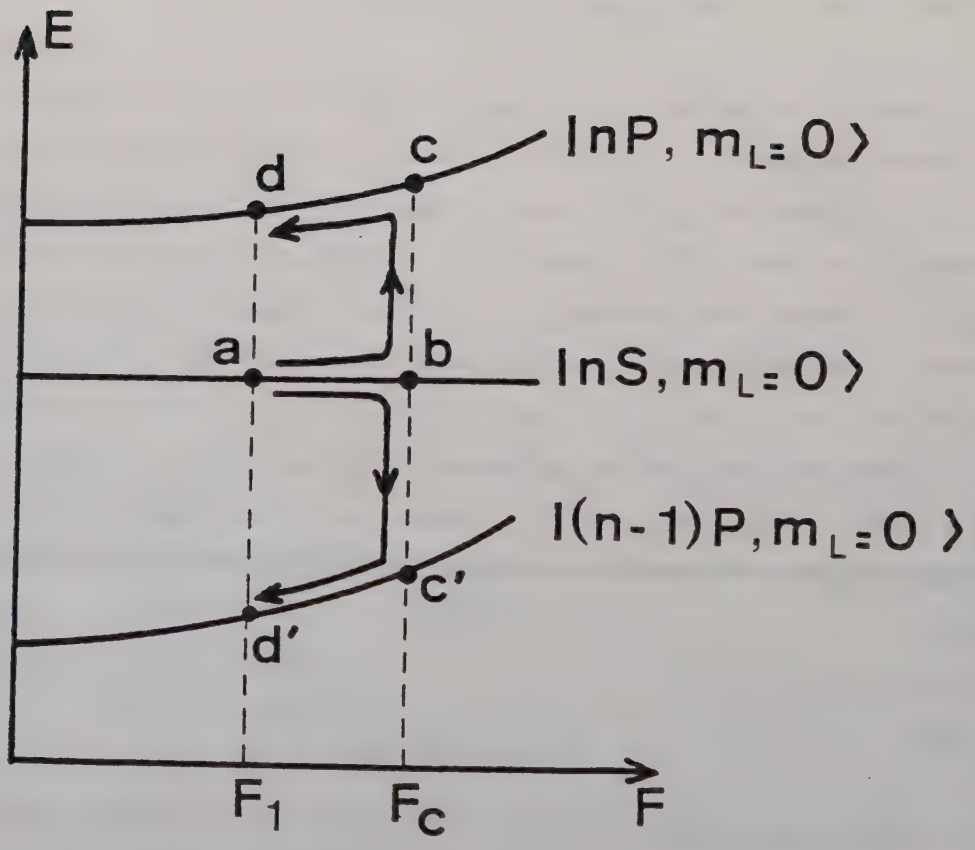


FIGURE III-20 : Niveaux d'énergie mis en jeu lors d'une collision résonnante montrant un changement irréversible de l'état de départ a .

collisions résonnantes (collisions résonnantes de mise en commun de l'énergie ou energy pooling resonant collisions) qui les porteront dans l'état c ($|np, m_\ell = 0, F = F_c\rangle$) et dans l'état c' ($|(n-1)p, m_\ell = 0, F = F_c\rangle$) soit :

$$Na(ns) + Na(ns) \rightarrow Na(np) + Na((n-1)p).$$

Si on baisse maintenant le champ jusqu'à la valeur $F = F_1$ pour revenir à la situation de départ, les atomes dans l'état c ou c' iront respectivement dans les états d ($|np, m_\ell = 0, F = F_1\rangle$) ou d' ($|(n-1)p, m_\ell = 0, F = F_1\rangle$) mais ne retourneront pas dans l'état a de départ via l'état b.

Ainsi donc cette expérience montre bien que l'on ne peut pas aller de façon adiabatique de l'état a à l'état c ou c' en passant par l'état b où il se produit un processus de transfert résonnant de nature collisionnelle. Un tel processus serait en mesure d'expliquer un brutal changement de durée de vie dans la mesure où la durée de vie du niveau c' serait beaucoup plus longue que celle du niveau b.

Dans la perspective de mettre en évidence un tel transfert entre le niveau A et deux niveaux symétriques de A, nous avons entrepris de faire une expérience comparable.

Dans un premier temps nous excitons les atomes de rubidium en présence d'un champ $F_c - \Delta F$ où F_c est la valeur du champ pour laquelle la vitesse d'ionisation des atomes est négligeable ($F \sim 4$ V/cm) : les atomes sont ainsi portés dans l'état a (figure III 21) où la vitesse d'ionisation n'est plus négligeable (les ions arrivent groupés et assez nombreux sur le détecteur).

Superposons à ce champ un créneau de champ électrique d'intensité ΔF et d'une durée de l'ordre de 2 µs ; les atomes passent effectivement de l'état a à l'état b où la vitesse d'ionisation est prati-

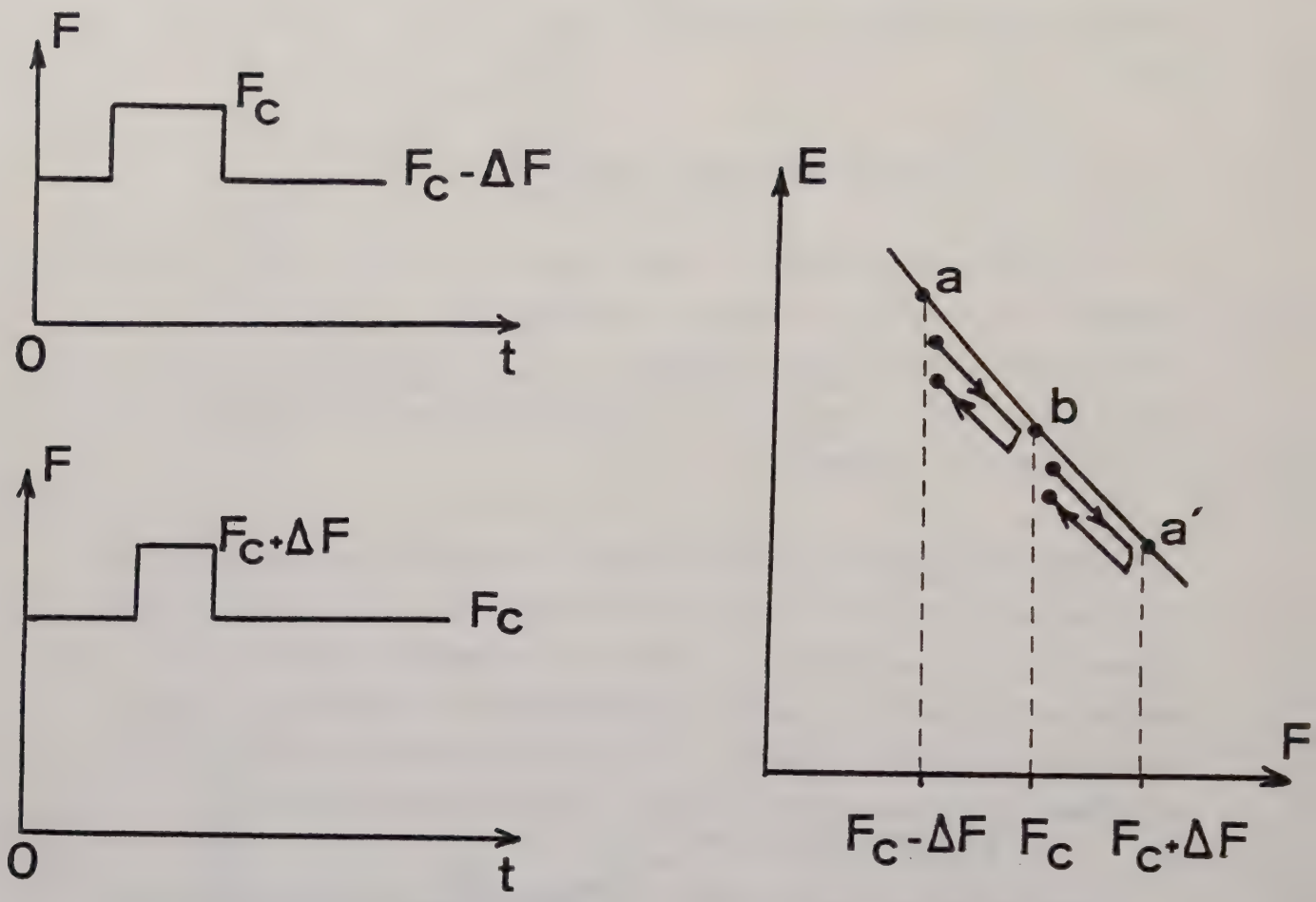


FIGURE III-21

Principe de l'expérience montrant le passage adiabatique des atomes de l'état a à l'état a' en traversant la zone de stabilité (b).

quement nulle (les ions arrivent alors très dispersés et peu nombreux sur le détecteur). Quand on fait revenir le champ à son amplitude initiale $F_c - \Delta F$, la vitesse d'ionisation des atomes redevient importante ce qui indique que les atomes sont revenus à l'état initial a , et ce de façon adiabatique.

Reprenons cette même expérience mais en excitant, cette fois-ci, les atomes de rubidium en présence du champ F_c si bien qu'ils sont portés dans l'état b où leur vitesse d'ionisation est pratiquement nulle. Superposons à ce champ une impulsion électrique d'intensité ΔF et d'une durée de l'ordre de 1 µs ; la vitesse d'ionisation devient alors importante parce que les atomes sont passés de l'état b à l'état a'.

Si le champ appliqué prend de nouveau la valeur $F = F_c$, on constate que la vitesse d'ionisation des atomes est redevenue négligeable, ce qui montre que les atomes sont revenus de façon adiabatique à l'état initial b.

Ces deux expériences montrent clairement que l'on peut passer de façon adiabatique de l'état a à l'état a' en traversant l'état b ; il n'existe donc aucun processus (du type collisionnel ou radiatif) permettant aux atomes de quitter l'état b pour d'autres états.

En conclusion, on peut dire que les atomes de rubidium acquièrent réellement, quand ils sont dans l'état b, une très grande stabilité vis-à-vis du champ électrique.

E 3. ETUDE DE LA VITESSE D'IONISATION EN FONCTION DU CHAMP ELECTRIQUE

Lors de l'étude du comportement d'un atome dans un champ électrique, nous avons été amenés à considérer deux mécanismes d'ionisation selon que l'élément étudié était l'atome d'hydrogène ou non. Cette distinction sera maintenue dans l'étude de la vitesse d'ionisation.

E 3.1. Cas de l'atome d'hydrogène

Jusqu'à ces dernières années, les seuls résultats expérimentaux concernant l'ionisation par champ de l'atome d'hydrogène, sont ceux de Rausch von Traubenberg et ses collaborateurs [22] . Ces expériences, qui ont porté sur certaines raies de la série de Balmer ($n = 4 - 8$), ont permis de connaître seulement les champs critiques d'ionisation ; quant à la dépendance en champ de la vitesse d'ionisation de l'atome, il n'a pas été possible de la mesurer étant donnée la mauvaise résolution des spectrogrammes.

Par contre de nombreuses études théoriques, menées dans le cadre de l'approximation non relativiste, ont permis de bien comprendre le mécanisme d'ionisation de l'atome d'hydrogène et de calculer la dépendance en champ de la vitesse d'ionisation [24, 71, 72, 73, 74] . Comme les états de l'atome ne peuvent pas interagir avec le continuum dans lequel ils baignent, ainsi que nous l'avons vu dans le chapitre I, l'atome ne peut s'ioniser que par effet tunnel ; ainsi donc lorsqu'on se déplace sur un niveau d'énergie caractérisé par les nombres quantiques E, n_1 et $|m_\ell|$, la vitesse d'ionisation de l'atome croît très vite avec l'intensité du champ électrique, ce qui signifie que le niveau d'énergie s'élargit jusqu'à former un continuum.

On peut avoir une idée de la façon dont varie la vitesse d'ionisation avec le champ F ; en effet comme l'ionisation de l'atome ne peut se faire que dans la direction η , l'électron est localisé dans les

régions $[\eta_1 , \eta_2]$ et $[\eta_3 , \infty]$ (voir figure I 4) séparées par une zone interdite dont le coefficient de transmission D peut s'écrire [75] :

$$D = D_0 \exp[-2 \int_{\eta_2}^{\eta_3} |p(\eta)| \, d\eta = D_0 \exp[-2 \int_{\eta_2}^{\eta_3} \sqrt{\frac{E}{2} + \frac{Z_2}{\eta} - \frac{m_\ell^2 - 1}{4\eta^2} + \frac{F\eta}{4}} \, d\eta \, .$$

Le calcul de cette intégrale montre que $D \sim e^{\alpha F}$. Ainsi donc la vitesse d'ionisation $\Gamma_I(F)$ par effet tunnel est proportionnelle d'une part à la transparence de la barrière de potentiel et d'autre part à la probabilité de présence de l'électron dans l'intervalle $[\eta_1 , \eta_2]$ qui dépend des nombres quantiques n_1 , E et $|m_\ell|$ soit :

$$\Gamma_I(F) = A e^{\alpha F} \quad \text{où} \quad A \text{ et } \alpha \text{ dépendent de } n_1 , E \text{ et } |m_\ell| \, .$$

Les premières mesures expérimentales de vitesse d'ionisation $\Gamma_I(F)$ sur les niveaux très excités de l'atome d'hydrogène (n = 30 - 40), qui n'ont été faites que récemment [76] , ont montré qu'il y avait un parfait accord avec les résultats du calcul théorique.

E 3.2. Cas d'un atome non hydrogénoïde

Ainsi que nous l'avons mentionné dans le chapitre I, l'étude expérimentale de l'ionisation par champ des états excités d'atomes en particulier alcalins a permis de mettre en évidence un mécanisme d'ionisation autre que l'effet tunnel ; en effet l'interaction électrostatique entre l'électron de valence et les électrons du coeur fait en sorte qu'il existe maintenant un couplage entre les différentes multiplicités de la figure I 6c (l'intensité de ce couplage dépend de la valeur de $|m_\ell|$.

Comme l'ionisation de l'atome se produit par couplage avec les niveaux instables venant de multiplicités plus élevées, on comprend alors pourquoi la vitesse d'ionisation Γ_I prend une valeur importante ($\Gamma_I \sim 10^{+7} s^{-1}$) dès qu'on franchit la limite d'ionisation classique ($E = -2\sqrt{F}$).

Toutefois, cette vitesse d'ionisation n'a aucune raison de varier de façon monotone croissante avec le champ électrique F, comme dans le cas de l'hydrogène. Ainsi quand on se déplace sur un niveau donné, la vitesse d'ionisation peut présenter, en fonction de F, de fortes augmentations toutes les fois que le niveau étudié interagit avec un autre niveau beaucoup plus instable.

En effet, considérons deux états A et B d'énergies propres non perturbées E_A et E_B de durée de vie à l'ionisation Γ_A^{-1} et Γ_B^{-1} ; supposons que ces deux états soient couplés par une interaction V_{AB} ($V_{AB} = \langle nn_1n_2m_\ell | V | n'n_1'n_2'm_\ell' \rangle$ où $|nn_1n_2m_\ell\rangle$ sont les états propres de l'atome d'hydrogène et V, en général, la partie non coulombienne du potentiel d'interaction). Les énergies des états propres en présence du couplage sont alors :

$$E - j\frac{\Gamma}{2} = \frac{1}{2}\left\{E_A + E_B - \frac{1}{2}j(\Gamma_A + \Gamma_B) \pm \left([E_A - E_B - \frac{j}{2}(\Gamma_A - \Gamma_B)]^2 + 4|V_{AB}|^2\right)^{1/2}\right\} .$$

Dans le cas où les niveaux ont des énergies différentes ($E_A \neq E_B$), le couplage peut être considéré comme faible en général ($|V_{AB}|^2 \ll (E_A - E_B)^2 + (\frac{\Gamma_A - \Gamma_B}{2})^2$) et il n'intervient qu'au second ordre dans les expressions des énergies et des durées de vie à l'ionisation. Le cas intéressant est celui où les deux niveaux ont même énergie ($E_A = E_B$). Plusieurs situations peuvent alors être envisagées selon l'ordre de grandeur de la perturbation $|V_{AB}|$ par rapport à $|\Gamma_A - \Gamma_B|$. Dans le cas d'un couplage fort ($|V_{AB}| \gg |\Gamma_A - \Gamma_B|$), les nouveaux états propres ont des énergies différentes mais des vitesses d'ionisation égales à $\Gamma = (\Gamma_A + \Gamma_B)/2$.

Dans le cas où le couplage est faible ($|V_{AB}| \ll |\Gamma_A - \Gamma_B|$), les énergies des niveaux sont inchangées alors que leurs durées de vie à l'ionisation subissent à peine une variation du second ordre en $|V_{AB}|$ (Ce cas est presque similaire à celui où $E_A \neq E_B$).

Ainsi la seule situation à présenter de l'intérêt est celle où le couplage est intense, les vitesses d'ionisation Γ_A et Γ_B très différentes avec $\Gamma_A \gg \Gamma_B \sim 10^6 s^{-1}$; on est alors dans le cas d'un couplage entre un état A instable ($\Gamma_A \sim 10^9 s^{-1}$) et un état B relativement stable ($\Gamma_B \sim 10^6 s^{-1}$). Il faut souligner que ce cas de figure ne peut exister que dans la zone II présentée sur la figure I 6c car dans la zone I tous les niveaux d'énergie sont stables (Γ_A ou $\Gamma_B \ll 10^6 s^{-1}$).

Ainsi donc en se déplaçant sur le niveau B , on observe une forte augmentation de la vitesse d'ionisation Γ_B juste au niveau de l'anticroisement : Γ_B passe alors très rapidement de $10^6 s^{-1}$ à $10^9 s^{-1}$ puis revient à quelques $10^6 s^{-1}$ comme cela a été observé sur le spectre $|m_\ell| = 2$ du sodium [44].

Il se peut que le couplage V_{AB} entre les niveaux A et B soit trop intense auquel cas la vitesse d'ionisation Γ_B ne retrouvera plus sa valeur d'avant l'anticroisement : le niveau B s'élargit brusquement pour former un continuum.

Quant à la vitesse d'ionisation du niveau A , il n'est pas possible de mettre en évidence sa légère diminution de façon expérimentale, compte tenu de sa valeur trop élevée ; en effet Γ_A est censée passer de $10^9 s^{-1}$ à $5.10^8 s^{-1}$.

Jusqu'ici nous n'avons pas tenu compte de la façon dont varient les vitesses d'ionisation Γ_A et Γ_B quand on se déplace sur les niveaux A et B. On est ainsi amené à définir en relation avec Γ_A et Γ_B des densités d'états du continuum associées aux niveaux A et B.

Moyennant ces conditions, considérons deux niveaux A et B de l'atome d'hydrogène dont les énergies $E_A(F)$ et $E_B(F)$ varient à peu près linéairement avec le champ F (pas de grosses variations de F) ; on peut alors écrire que :

$$E_A(F) - E_B(F) = A(F - F_c)$$

où F_c indique la valeur pour laqeulle les deux niveaux A et B se croisent. L'ionisation, due uniquement à l'effet tunnel, se fait à des vitesses qui dépendent fortement du niveau étudié.

Supposons que le niveau A soit légèrement instable ; il possède alors une largeur $\Gamma_A(F)$ qui croît de façon exponentielle avec le champ F soit [24] :

$$\Gamma_A(F)/2 = \alpha\ e^{\beta F} \qquad \beta > 0 \ .$$

En fait on peut associer à cet état quasi résonnant E_A un continuum qu'on peut décrire par sa densité d'états $C_A(E,F)$ dont la forme est une fonction lorentzienne normalisée [15, 16]

$$C_A(E,F) = \frac{1}{\Pi} \cdot \frac{\Gamma_A(F)/2}{(E - E_A(F))^2 + (\Gamma_A(F)/2)^2} \ .$$

La position et la largeur de cette lorentzienne dépendent de F : en effet, quand F croît sa largeur $(\Gamma_A(F))$ augmente et son maximum $(\frac{1}{\Pi} \cdot \frac{2}{\Gamma_A(F)})$ diminue.

Au voisinage de l'énergie de résonance $E_A(F)$, les fonctions d'ondes $\Psi_A(E,F,\vec{r})$ des états du continuum s'écrivent comme suit :

$$\Psi_A(E,F,\vec{r}) \simeq [C_A(E,F)]^{1/2}\ \varphi_A(\vec{r})$$

dans la mesure où le champ F n'est pas intense $(F \sim F_c)$ et l'électron pas trop loin du noyau $(|\vec{r}| < R)$.

L'état B est supposé quasi-discret (la vitesse d'ionisation $\Gamma_B(F)$ est complètement négligeable) ; comme la densité des états $C_B(E,F)$ du continuum associé au niveau B est pratiquement décrite par un pic de Dirac, on peut écrire que :

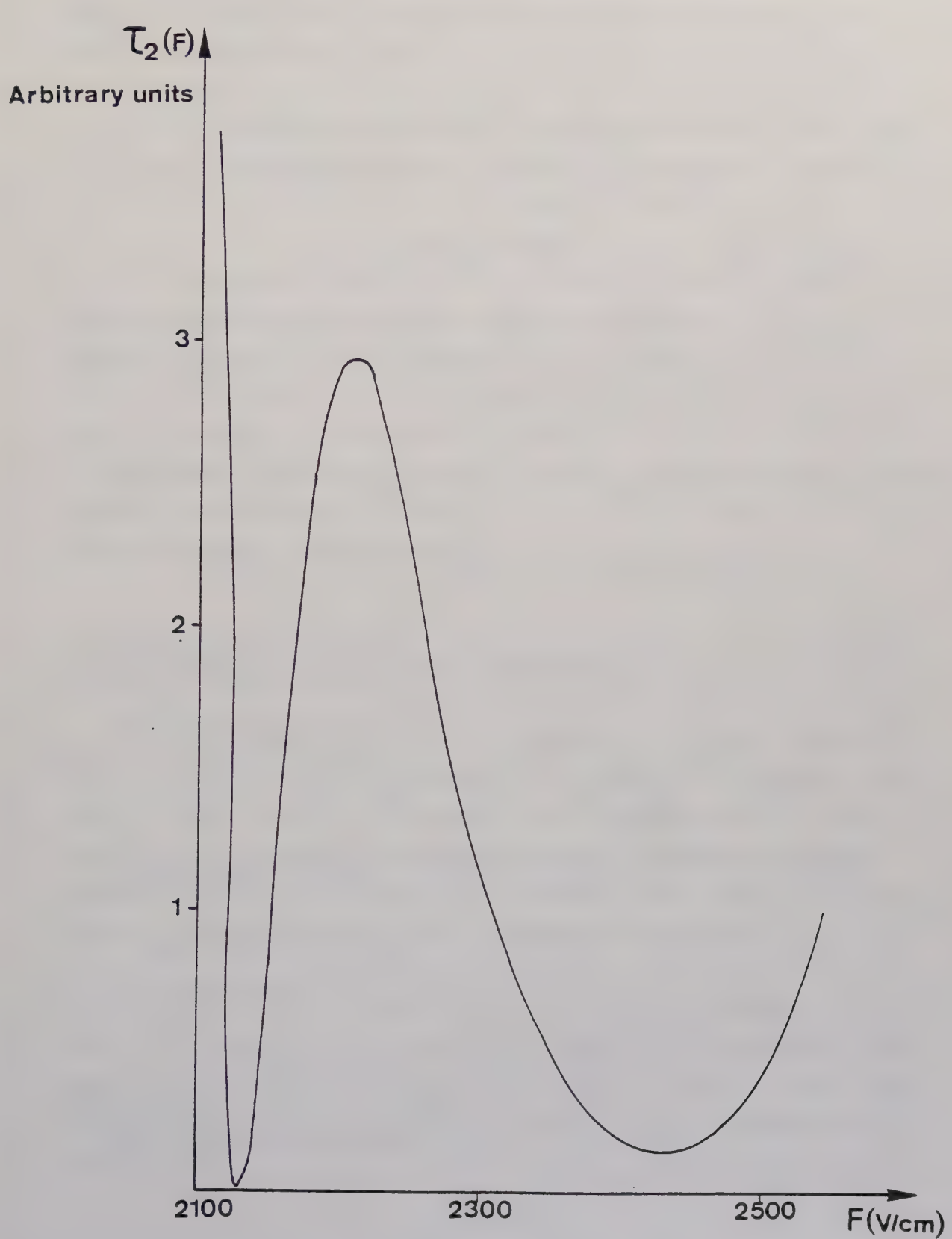


FIGURE III-22 : Dépendance en champ électrique de la durée de vie à l'ionisation du niveau n=21 , n_1=4 , $|m_\ell|$=1 .

$$\Psi_B(E,F,\vec{r}) \simeq \varphi_B(\vec{r}) .$$

Supposons maintenant que les deux états A et B soient couplés par une perturbation $W(\vec{r})$ que l'on considère comme nulle pour $|\vec{r}| > R$. Dans la limite où ce couplage n'est pas intense, l'état quasi-stable B peut s'ioniser par l'intermédiaire d'un processus similaire à l'auto-ionisation ; sa durée de vie à l'ionisation est donnée par [31] :

$$\tau_B(F) = \frac{\hbar}{2\Pi} \left| \langle \Psi_A (E, F, \vec{r}) | W(\vec{r}) | \varphi_B(\vec{r}) \rangle \right|^{-2}_{E = E_B(F)}$$

A un champ F donné, l'intensité du couplage entre les deux états A et B est proportionnelle à la valeur prise par la densité d'états du continuum $C_A(E,F)$ quand $E = E_B(F)$:

$$\tau_B(F) = \frac{\hbar}{2\Pi} \left| \langle \varphi_A | W | \varphi_B \rangle \right|^{-2} \cdot \Pi \left\{ [E_B(F) - E_A(F)]^2 \left(\frac{\Gamma_A(F)}{2} \right)^{-1} + \frac{\Gamma_A(F)}{2} \right\}$$

$$\tau_B(F) = \frac{\hbar}{2\Pi} \left| \langle \varphi_A | W | \varphi_B \rangle \right|^{-2} \left\{ A^2 (F - F_c)^2 \alpha^{-1} e^{-\beta F} + \alpha e^{\beta F} \right\}$$

On peut voir que la durée de vie $\tau_B(F)$ ne décroît pas nécessairement de façon monotone quand le niveau B entre progressivement en interaction avec le niveau A ; en effet l'expression entre parenthèses admet trois extremums (deux minimums et un maximum) à condition de satisfaire l'inégalité $\alpha^2 \beta < A^2 F_c (2 + \beta F_c)$ (voir figure III 22).

La figure III 22 permet de faire deux remarques importantes :

- La durée de vie $\tau_B(F)$ décroît pour $F < F_a < F_c$ et croît pour $F > F_a$; il convient de souligner que cette décroissance rapide de τ_B se situe près du croisement des niveaux A et B : τ_B passe de 10^{-3} s à une valeur pratiquement nulle et ceci en un intervalle de champ $\Delta F \sim 20$ V/cm. On peut ainsi expliquer la forte augmentation que subit la vitesse d'ionisation d'un niveau quasi-stable interagissant avec un niveau très large [44].

- Pour des valeurs de β pas trop élevées (une vitesse d'ionisation du niveau A de l'ordre $10^8 s^{-1}$) on observe, outre le minimum pour $F \simeq F_c$ déjà mentionné, un maximum pour la valeur $F \simeq F_c + \frac{2}{\beta}$ suivi d'un second minimum.

Il est donc possible, moyennant certaines conditions, que la durée de vie τ_B présente un maximum ; on assiste ainsi à une stabilisation de l'état B sur un intervalle de champ de l'ordre de 40 V/cm.

En conclusion, on peut dire que ce modèle élémentaire permet de rendre compte de la forte augmentation de la durée de vie d'un niveau quasi-stable couplé à un niveau instable ; ce modèle a cependant des limites qui viennent du fait que l'on n'a pas tenu compte de l'élargissement du niveau B ; il ne rend pas compte de la réalité physique dans la mesure où la durée de vie $\tau_B(F)$ se remet à croître jusqu'à reprendre sa valeur antérieure au croisement, au lieu de tendre vers zéro comme on aurait pu s'y attendre physiquement.

E 4. INTERPRETATION DES RESULTATS EXPERIMENTAUX

Afin d'interpréter les résultats observés sur certains niveaux de l'atome de rubidium il est nécessaire de connaître la structure Stark dans la plage d'énergie et de champ explorée expérimentalement. Pour cela il est plus simple de déterminer d'abord la structure Stark de l'atome d'hydrogène puis ensuite de considérer les perturbations dues soit aux électrons du coeur, soit aux effets relativistes.

Dans le cas de l'hydrogène il a été possible de calculer de façon exacte les énergies et les largeurs des niveaux dont la vitesse d'ionisation est non négligeable ; quant aux niveaux stables, un calcul de perturbation au 4ème ordre s'avère suffisant pour la détermination de leurs énergies.

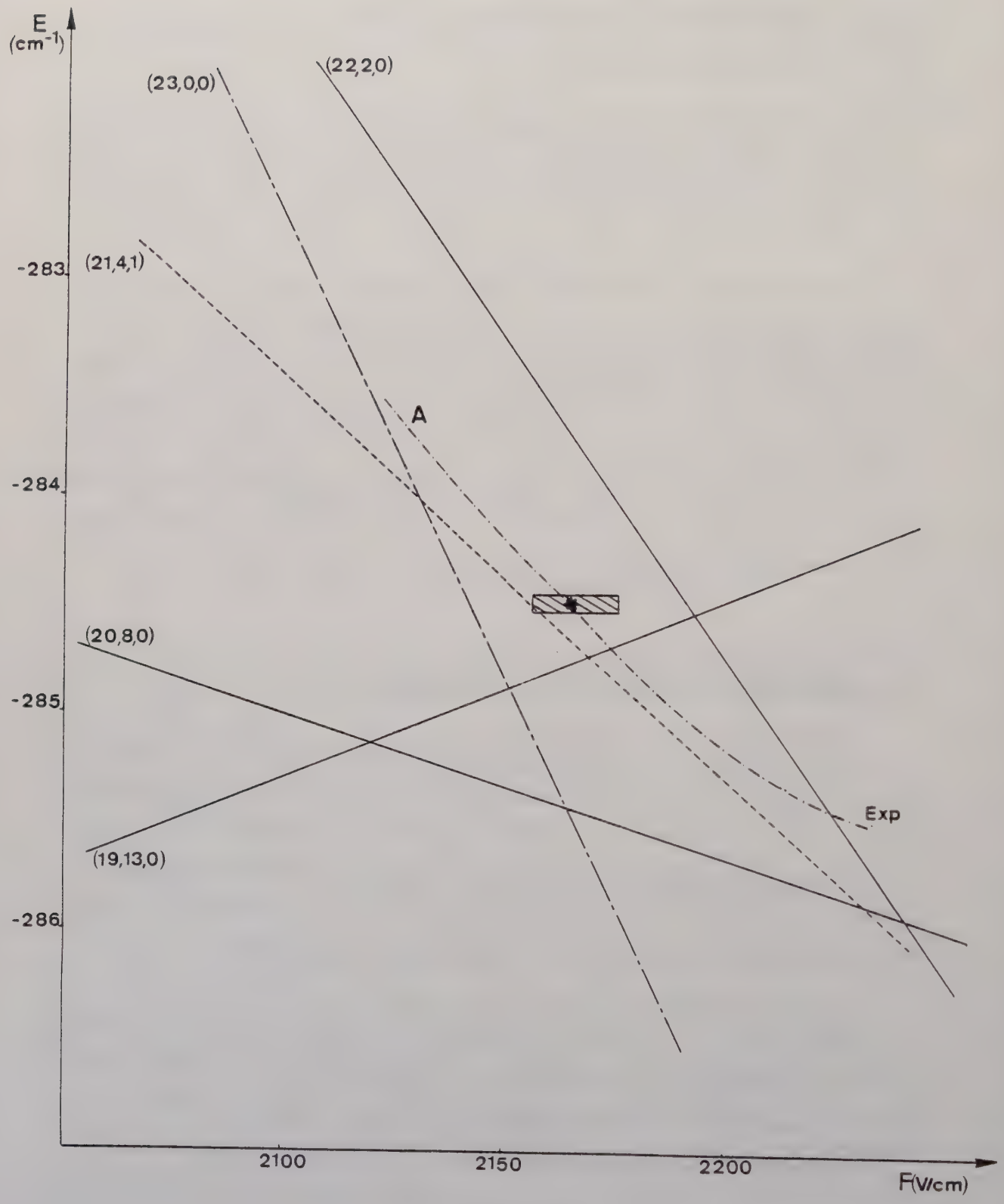


FIGURE III-23

Structure Stark des états $m_\ell = 0$ de l'hydrogène au voisinage de $E = -284\ cm^{-1}$.

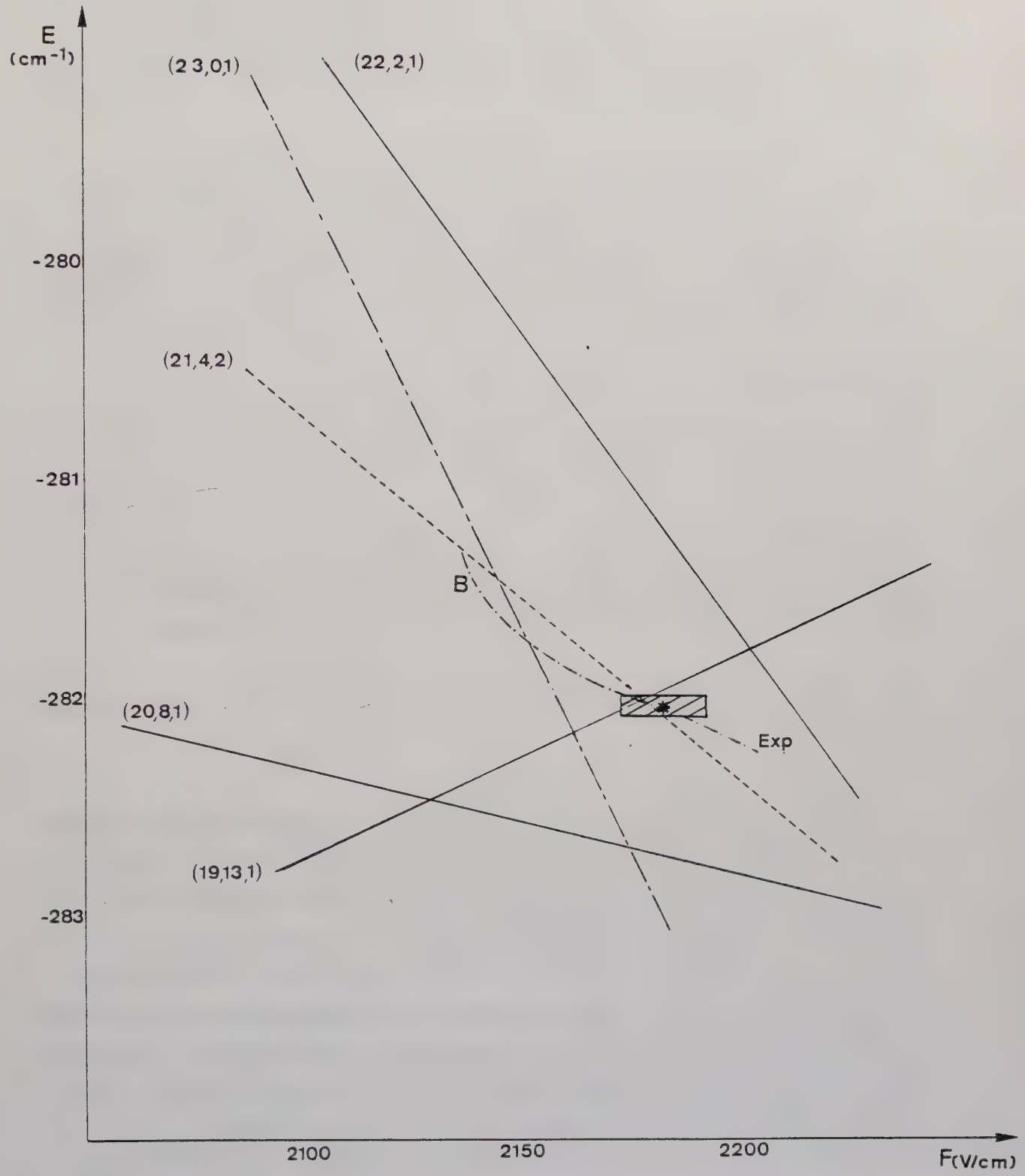


FIGURE III-24

Structure Stark des états $|m_\ell| = 1$ de l'hydrogène au voisinage de $E = -282\ cm^{-1}$.

Les figures III 23 et III 24 représentent les niveaux Stark théoriques $m_\ell = 0$ et $|m_\ell| = 1$ de l'hydrogène se trouvant au voisinage des niveaux expérimentaux A et B ; comme l'interaction spin-orbite est totalement négligeable, il n'existe alors aucun couplage entre les états $m_\ell = 0$ et $|m_\ell| = 1$.

La région explorée se situant près de la limite d'ionisation classique, on peut dire que les états les plus instables sont ceux dont le nombre quantique n_1 est nul ($n_1 = 0$) ; c'est ainsi que les durées de vie à l'ionisation des états $n = 23$, $n_1 = 0$, $|m_\ell| = 0$ ou 1 décroissent de 10^{-8}s à 10^{-10}s quand le champ F croît de 2050 V/cm à 2250 V/cm tandis que celles des autres états restent supérieures à 10^{-3} s. On se trouve alors dans une situation analogue à celle du modèle théorique exposé, où un niveau instable n, $n_1 = 0$, $|m_\ell| = 0$ ou 1 (en l'occurence les niveaux $n = 23$ $n_1 = 0$ $|m_\ell| = 0$ ou 1) croise des niveaux stables ($n = 19$ $n_1 = 13$ $|m_\ell| = 0$ ou 1 et $n = 21$ $n_1 = 4$ $|m_\ell| = 1$ ou 2) dans la région spectrale où l'anomalie a été observée. Il reste toutefois à définir la nature de ce couplage.

Pour la clarté de l'exposé, nous ne retiendrons que le cas du niveau A (excitation Π).

Dans la mesure où l'on ne considère que le couplage électrostatique, le niveau expérimental A ne peut pas être identifié avec le niveau $|21, 4, m_\ell = 1\rangle$ que l'on ne peut pas atteindre par une excitation Π ($\Delta m_\ell = 0$) à partir du niveau fondamental $|\,^2S_{1/2}\ m_\ell = 0\rangle$. Quant au niveau instable $|23, 0, 0\rangle$, on ne peut pas l'observer expérimentalement ; en effet comme la densité des états associée à ce niveau est très faible ($C(E = E_r,F)$ est inversement proportionnelle à la durée de vie à l'ionisation du niveau $E = E_r$), on s'attend à ce que la probabilité d'excitation d'un tel état instable soit négligeable.

Quant au niveau $|n = 19 \quad n_1 = 13 \quad m_\ell = 0\rangle$ couplé principalement au niveau instable $|n = 23 \quad n_1 = 0 \quad m_\ell = 0\rangle$, il voit sa durée de vie passer à une valeur de l'ordre de 5×10^{-11} s pour un champ $F = 2150$ V/cm de sorte qu'il ne pourra plus être observé.

En résumé, on peut dire qu'il n'est pas possible de rendre compte de l'anomalie observée dans la durée de vie du niveau Stark A du rubidium en ne prenant en considération que l'interaction électrostatique. En effet cette interaction rend instable tous les niveaux $m_\ell = 0$ situés près du niveau A alors que notre modèle exige au moins un niveau très stable.

En fait, dans le cas d'atomes relativement lourds tel que l'atome de rubidium, on ne peut plus négliger l'interaction spin-orbite ; ainsi le bon nombre quantique n'est plus $|m_\ell|$ mais $|m_j|$ et dans ce cas chaque état m_j est un mélange d'états $m_\ell = m_j \pm \frac{1}{2}$. Des calculs théoriques ainsi que des expériences ont permis de mettre en évidence le rôle joué par l'interaction spin-orbite dans les alcalins lourds [38] .

On peut atteindre lors d'une excitation π ($\Delta m_\ell = 0$) aussi bien les états $m_\ell = 0$ que les états $|m_\ell| = 1$. La figure III 23 montre en effet que le niveau A s'identifie avec le niveau $|21, 4, 1\rangle$ et non avec un niveau de $m_\ell = 0$. Dans ces conditions il devient possible d'interpréter l'anomalie observée sur le niveau A : l'interaction spin-orbite induit un couplage entre l'état quasi discret $|21, 4, 1\rangle$ et l'état instable $|23, 0, 0\rangle$; on comprend alors pourquoi la durée de vie du niveau $|21, 4, 1\rangle$ subit une soudaine anomalie.

A partir des niveaux $|21, 4, 1\rangle$ et $|23, 0, 0\rangle$ il nous a été possible de déterminer les valeurs de F_c, A, α, β et d'en déduire alors la position théorique de l'anomalie $E_c^{th} = -285{,}5\,cm^{-1}$ $F_c^{th} = 2210$ V/cm , qui ne diffère pas beaucoup de la position expérimentale de l'anomalie $E_c^{exp} = -284{,}5\ cm^{-1}$ $F_c^{exp} = 2168$ V/cm .

On a représenté sur la figure III 22 la dépendance en F de la durée de vie du niveau stable $|\ 21, 4, 1\ \rangle$ telle qu'elle est prévue par le modèle théorique.

En ce qui concerne le niveau expérimental B , on aurait abouti aux mêmes résultats en analysant l'interaction entre l'état instable $|23, 0, 1\rangle$ et l'état discret $|21, 4, 2\rangle$.

En conclusion, on peut dire que l'interaction spin-orbite contribue, de la même manière que l'interaction électrostatique, à modifier profondément le comportement d'un atome placé dans un champ au point de le rendre presque totalement stable. Ce rôle important, que joue l'interaction spin-orbite dans les mécanismes d'ionisation par champ, ressortira également des expériences qui seront exposées dans le prochain chapitre.

Il faut souligner toutefois que ce comportement assez singulier de la vitesse d'ionisation n'a pu être expliqué que parce que nous avons introduit dans nos calculs une forme explicite de la densité d'états du continuum associée au niveau instable ; on a également abouti aux mêmes conclusions en prenant une vitesse d'ionisation du type $\Gamma_A(F) \sim F^B$ $(\beta > 0)$ et une densité d'états de forme gaussienne

$$C_A(E,F) \sim \exp\left[\frac{-4(E - E_A(F))^2}{\Gamma_A(F)^2}\right] .$$

Si notre modèle élémentaire rend bien compte du phénomène observé, ainsi que de sa localisation, il mériterait certainement d'être encore un peu plus élaboré. En effet le modèle théorique prévoit une résonance dont la largeur en champ est de l'ordre de 100 V/cm alors que les résonances données par l'expérience ont des largeurs de quelques V/cm ($F \sim 2$ à 4 V/cm) ; de plus la nouvelle augmentation de la durée de vie à l'ionisation, qui n'a pas pu être observée expérimentalement, tient essentiellement au fait que nous avons considéré le niveau B comme étant un niveau discret alors qu'il aurait fallu le considérer comme quasi-discret et par là même le décrire en termes de densité d'états comme le niveau A.

De plus, pour bien rendre compte de l'anomalie observée sur le niveau A, il aurait fallu certainement prendre en considération, comme on peut le voir sur la figure III 23, l'interaction entre les trois niveaux $|23, 0, 0\rangle$, $|19, 13, 0\rangle$ et $|21, 4, 1\rangle$ les deux premiers, couplés par l'interaction électrostatique, interagissent avec le troisième par l'intermédiaire du couplage spin-orbite.

En outre, il aurait fallu décrire plus exactement la dépendance en énergie de la densité d'états associée au niveau A ; si le profil lorentzien décrit bien les résonances associées aux niveaux quasi-discrets, par contre il ne semble pas assez bien adapté, ainsi que nous l'avons vu au chapitre I, à la description des résonances situées près de l'énergie critique.

NIVEAU D'ENERGIE A (EXCITATION Π)

F V/cm	2163	2164	2165	2166	2168	2170	2171	2172	2173
$\tau(\mu s)$	0,8	0,9	1,9	5	30	9	2,4	0,8	0,5

NIVEAU D'ENERGIE B (EXCITATION σ)

F V/cm	2176	2178	2180	2182	2184	2186	2188
$\tau(\mu s)$	0,3	0,6	1,2	19	1,8	0,7	0,4

NIVEAU D'ENERGIE SITUE AU VOISINAGE DE $E \simeq -285\ cm^{-1}$ (EXCITATION σ)

F V/cm	2147	2157	2162	2167	2172	2177	2182
$\tau(\mu s)$	11	5,2	3	2	1,2	0,75	0,55

TABLEAU II

Chapitre IV

ETUDE AU VOISINAGE DE LA LIMITE D'IONISATION EN CHAMP NUL E = 0

Dans le chapitre précédent on s'est intéressé au comportement de l'atome de rubidium en présence d'un champ électrique F , mais uniquement au voisinage de la limite d'ionisation classique. L'intérêt de ce travail venait du fait qu'il nous a permis de comprendre les divers mécanismes d'ionisation.

Il a été possible d'interpréter les phénomènes observés au voisinage de $E = E_c$ de façon relativement simple, en se limitant à l'étude de l'interaction entre un petit nombre de niveaux discrets et un seul continuum caractérisé dans l'approximation hydrogénoïde par le nombre quantique parabolique $n_1 = 0$. Les états de nombre quantique $n_1 \neq 0$ peuvent être considérés comme quasidiscrets, puisque ces niveaux sont situés en dessous de leur énergie critique parabolique E_c^p (n_1 , $|m_\ell|$), dont la valeur croit avec la valeur du nombre n_1 .

L'analyse du domaine surcritique ($E > -2\sqrt{F}$) s'avère beaucoup plus délicate, puisqu'il faut tout d'abord considérer les divers continuums présents dans le modèle hydrogénoïde, et ensuite tenir compte de la perturbation mutuelle de ces continuums introduite par la partie non séparable H_{NS} de l'halmiltonien du système.

Le prolongement normal de ce travail était alors d'étudier les deux cas suivants :

- Le champ électrique F est prédominant devant le champ coulombien ; on est en régime de champ fort.

- Le champ électrique F est du même ordre de grandeur que le champ coulombien ; on est en régime de champ intermédiaire.

Le premier cas se rapporte pratiquement au mouvement d'un électron soumis uniquement à un champ électrique. Ce problème auquel nous ne nous intéressons pas expérimentalement, a fait l'objet d'un traitement exact dont les solutions sont données par les fonctions d'Airy [21] .

Quant au deuxième cas, dans lequel il n'est plus possible de séparer l'hamiltonien en une partie principale et une perturbation, il ne peut être résolu que par des méthodes numériques approchées.

D'une façon générale ce problème, qui a été déjà étudié en physique du solide [77 , 78] (étude de l'absorption dans les semi-conducteurs ou isolants placés dans un champ électrique), se pose théoriquement dès que la méthode des perturbations devient inapplicable, c'est à dire toutes les fois que le mouvement d'une particule est régi par deux ou plusieurs champs d'intensités comparables.

En fait, en physique atomique cette région de régime intermédiaire n'a suscité d'intérêt que lorsque les lasers à colorant accordables ont permis de peupler de façon sélective et efficace des états hautement excités ; en effet pour des champs électriques réalisables au laboratoire ($F \sim$ quelques kV/cm), l'interaction avec le champ électrique extérieur ($\sim Fz$) ne sera comparable à l'énergie de liaison de l'électron ($\simeq \frac{1}{2n^2}$) que pour des états de nombre quantique principal $n > 20$ ($n \simeq F^{-1/4}$).

En outre l'étude de ces états très excités ($E \sim 0$) présente un grand intérêt dans la mesure où les résultats obtenus sur l'atome d'hydrogène sont encore applicables en première approximation, parce que le potentiel central vu par l'électron optique est pratiquement coulombien.

Parmi les travaux effectués dans cette région, on peut citer principalement les travaux théoriques sur la section efficace de photoionisation de l'atome d'hydrogène [15 , 16 , 19 , 79] ainsi que les

expériences réalisées sur les alcalins (Rb et Na) [62, 67, 80, 81] et les alcalino-terreux (baryum) [81].

Toutefois de grandes divergences sont apparues lors de l'interprétation théorique de ces résultats expérimentaux.

C'est pourquoi nous avons décidé de réaliser une expérience de photoionisation sur des atomes alcalins en présence d'un champ électrique fort, expérience dans laquelle les états des atomes excités seraient nettement mieux définis que dans les expériences réalisées jusqu'alors.

Nous pensons que l'intérêt d'une telle expérience apparaitra de façon beaucoup plus convaincante, après avoir rappelé les résultats théoriques et expérimentaux obtenus à ce jour dans ce domaine.

A - SECTION EFFICACE DE PHOTOIONISATION EN PRESENCE D'UN CHAMP ELECTRIQUE AU VOISINAGE DE LA LIMITE D'IONISATION SANS CHAMP : MODELES QUANTIQUE ET CLASSIQUE

A 1. MODELE HYDROGENOIDE DE LA DENSITE DE FORCES D'OSCILLATEURS : MODELE QUANTIQUE

Ainsi que nous l'avons vu au chapitre I, ce modèle rend compte des oscillations observées au voisinage de la limite d'ionisation en champ nul ($E = 0$) dans la section efficace de photoionisation d'un état S ($\ell = 0$, $m_\ell = 0$) pour une polarisation Π de la lumière excitatrice. Pour expliquer l'existence de telles oscillations, il faut étudier non pas la variation en fonction de l'énergie de la densité totale d'états $C(E)$, mais celle de la densité de forces d'oscillateurs $\frac{df}{dE}$.

Près du noyau ($\eta = \xi \simeq 0$) on a vu que la fonction d'onde $\psi_{n_1}^{|m_\ell|}(E)$ pouvait s'écrire sous la forme :

$$\Psi_{n_1}^{|m_\ell|}(E) = \sqrt{C_{n_1}^{|m_\ell|}(E)}\,(\xi\eta)^{|m_\ell|/2}\,\frac{e^{im_\ell\Phi}}{\sqrt{2\pi}}$$

où la quantité $C_{n_1}^{|m_\ell|}(E) = \lim_{\xi,\eta \to 0} \dfrac{|\Psi_{n_1}^{|m_\ell|}(E)|^2}{(\xi\eta)^{|m_\ell|}}$ représente la densité partielle des états $|n_1, m_\ell, E\rangle$.

La quantité $C_{n_1}^{|m_\ell|}(E)$ peut s'écrire de manière différente :

$$C_{n_1}^{|m_\ell|}(E) = \langle \Psi_{n_1}^{|m_\ell|}(E) \left| \frac{4}{\xi+\eta} \times \frac{\delta(\xi)\,\delta(\eta)}{(\xi\eta)^{|m_\ell|}} \right| \Psi_{n_1}^{|m_\ell|}(E) \rangle$$

où $\delta(\xi)$ et $\delta(\eta)$ représentent des fonctions de Dirac.

Sous cette forme la densité partielle $C_{n_1}^{|m_\ell|}(E)$ apparait comme une grandeur diagonale qui ne fait intervenir que la seule fonction d'onde $\psi_{n_1}^{|m_\ell|}(E)$.

Elle possède peu de structure pour des énergies $E > E_c^p(n_1, |m_\ell|)$ (voir figure I7).

En conséquence, la densité totale d'états, dont la valeur s'obtient en additionnant toutes les contributions partielles $C_{n_1}^{|m_\ell|}(E)$ en raison des propriétés de symétrie propres à l'atome d'hydrogène, possède elle aussi peu de structure.

En revanche la densité partielle des force d'oscillateurs est une grandeur non diagonale, qui fait intervenir deux fonctions d'ondes $\psi_{n_1}^{|m_\ell|}(E)$ et ψ_i (ψ_i est la fonction d'onde de l'état initial). Dans le calcul des forces d'oscillateurs, il peut apparaître des phénomènes d'annulation, dont il est en général difficile d'évaluer l'importance.

Cependant le calcul des forces d'oscillateurs à partir d'un état S ($\ell = m_\ell = 0$) a montré que l'on pouvait observer une structure en excitation Π ($\Delta m_\ell = 0$) et ne rien observer en excitation σ ($|\Delta m_\ell| = 1$).

Ces résultats ont pu être interprétés en étudiant les propriétés de symétrie par rapport au plan $z = 0$ de la fonction d'onde ψ_i, de l'opérateur de transition dipolaire électrique (z ou $x \pm iy$) et de la fonction d'onde $\psi^{|m_\ell|}(E_s)$ de l'état final qui est symétrique pour une valeur bien précise de l'énergie $E = E_s$.

Comme nous l'avons vu précédemment (chapitre I, §.2.2.b), la constante de séparation Z_1 décroit avec l'énergie E : elle passe d'une valeur voisine de 1 pour l'énergie critique E_c^p à une valeur voisine

de zéro pour $E = E_d$ en prenant la valeur $Z_1 \simeq Z_2 = \frac{1}{2}$ pour une énergie $E = E_s$.

La généralisation à un état initial Ψ_i différent d'un état S a donné des règles simples concernant la parité de la somme $\ell + |m_\ell|$ et la nature de l'excitation lumineuse (Π ou σ) .

Toutefois il faut souligner que cette règle ne donne aucune indication sur l'importance des phénomènes d'annulation pour des énergies E différentes de E_s .

En particulier cette règle s'avère insuffisante dans l'étude de la photoionisation à partir d'un état de moment angulaire ℓ_i non nul ($\ell_i \neq 0$) . En effet, si on utilise les coordonnées sphériques pour décrire les fonctions d'ondes, il existe deux voies distinctes de photoionisation mettant en jeu les continuums $\ell_f = \ell_i + 1$ et $\ell_f = \ell_i - 1$; ces deux voies d'ionisation donnent lieu à des phénomènes d'interférence qui peuvent être suffisamment importants pour faire apparaître des modulations supplémentaires dans le calcul de la section efficace totale de photoionisation.

Dans le cas d'un état initial S ($^2S_{\frac{1}{2}}$ ou ^1S_o) , des oscillations apparaissent seulement lors d'une excitation Π ou, ce qui est équivalent dans cet exemple précis, lorsqu'on excite des états $m_\ell = 0$. L'étude de la section efficace de photoionisation d'états S a créé une ambiguité entre le modèle de la densité de forces d'oscillateurs (modèle quantique) et le modèle classique qui, comme nous le verrons ci-dessous, associe l'apparition d'oscillations à l'excitation d'états stables $m_\ell = 0$.

Cette ambiguité vient du fait que l'excitation Π est identique à l'excitation des états $m_\ell = 0$ dans le cas d'un état S ($\ell = m_\ell = 0$).

A 2. MODELE DE LA DENSITE D'ETATS DU CONTINUUM : MODELE CLASSIQUE

Ce modèle, basé sur des considérations semi-classiques, détermine seulement les caractéristiques des états stables à $E = 0$; il permet ainsi de rendre compte des oscillations observées, en polarisation Π près de $E = 0$, dans le spectre de photoionisation de l'atome de rubidium [62] .

Le calcul classique des trajectoires de l'électron soumis simultanément au champ du noyau et à un champ électrique extérieur, montre que les trajectoires stables correspondent à un mouvement localisé au voisinage immédiat de la partie positive de l'axe Oz défini par la position du noyau et la direction du champ électrique extérieur (c'est à dire du côté de la cathode). On associe à ces trajectoires classiques des orbites allongées le long de l'axe Oz , auxquelles on peut faire correspondre les états $m_\ell = 0$ dans un traitement quantique [67].

Pour ces états $m_\ell = 0$, la densité électronique sur l'axe Oz est maximale, car elle est proportionnelle à $| Y_{\ell,m_\ell=0} (\theta \simeq 0,\varphi) |^2$.

En effet le développement de la fonction d'onde $\Psi^{(E)}_{n_1,m_\ell=0} (\theta \simeq 0,\varphi)$ sur les harmoniques sphériques $Y_{\ell,m_\ell=0} (\theta \simeq 0,\varphi)$:

$$\Psi^{(E)}_{n_1,m_\ell=0} (\theta \simeq 0,\varphi) = \sum_{\ell=0}^{\infty} a^{(E)}_{\ell,m_\ell=0} (\vec{r})\, Y_{\ell,m_\ell=0}(\theta \simeq 0,\varphi) \quad \text{avec } Y_{\ell,m_\ell=0} = \sqrt{\frac{2\ell+1}{4\pi}}$$

permet de voir que la fonction d'onde $\Psi^{(E)}_{n_1,m_\ell=0}$ contient de plus en plus de fonctions $Y_{\ell,m_\ell=0} (\theta \simeq 0,\varphi)$ de rang ℓ élevé quand on se rapproche de $E = 0$ (ℓ varie de 0 à $n - 1$ et n augmente au voisinage de $E = 0$) .

Dans le cadre d'un calcul de perturbation au premier ordre, la décomposition des fonctions d'ondes associées à une multiplicité n donnée fait intervenir les harmoniques sphériques de rang ℓ dont la valeur varie de 0 à $n-1$, avec une valeur de n d'autant plus élevée qu'on se rapproche de $E = 0$.

En fait parmi tous les états $m_\ell = 0$, les seuls à être stables sont ceux dont la densité de charge est uniquement importante du côté de la cathode, l'ionisation ayant lieu du côté de l'anode.

Comme la dissymétrie des fonctions d'ondes des états $| n\, n_1 n_2\, m_\ell \rangle$ par rapport au plan $z = 0$ est proportionnelle à $n_1 - n_2$, on trouve que les états les plus stables sont caractérisés par les nombres quantiques $n_2 = 0$ et $n_1 = n - 1$ [3].

Un simple calcul de perturbations au premier ordre permet d'évaluer leur espacement au voisinage de $E = 0$; en effet le niveau $n_2 = 0$ $n_1 = n - 1$, dont l'énergie E est nulle dans un champ électrique F, appartient à la multiplicité n telle que :

$$-\frac{1}{2n^2} + \frac{3}{2} F n^2 \simeq 0 \qquad \text{soit} \qquad n = (3F)^{-1/4} .$$

L'écart d'énergie $\frac{dE}{dn}$ entre les deux niveaux $n_1 = n - 1$ et $n_1 = n$, appartenant à deux multiplicités successives n et $n+1$, est donné par :

$$\frac{dE}{dn} = \frac{1}{n^3} + 3Fn \qquad (\text{unités atomiques})$$

où le premier terme représente l'écart d'énergie en champ nul des deux multiplicités, et le second terme la variation de la correction en énergie au premier ordre ; ces deux termes étant égaux au voisinage de $E = 0$, on obtient alors :

$$\frac{dE}{dn} = 0{,}052\, F^{3/4} \qquad \left(\frac{dE}{dn} \text{ en } cm^{-1} \text{ et } F \text{ en } V/cm\right).$$

Si on pousse le calcul de perturbations au deuxième ordre, l'espacement des résonances devient égal à :

$$\frac{dE}{dn} = 0{,}036\ F^{3/4} \quad .$$

Quant aux états de $|m_\ell| \neq 0$, pour lesquels la probabilité de présence de l'électron sur l'axe Oz est nulle ($Y_{\ell,m_\ell}(\theta \simeq 0, \varphi) = 0$ $\forall m_\ell \neq 0$), ils sont associés à des orbites classiques qui deviennent instables dès que l'on se rapproche de $E = 0$.

En résumé, seuls les états $m_\ell = 0$ sont stables au voisinage de $E = 0$; ces états sont excités à condition que le nombre quantique magnétique $|m_\ell|$ de l'état initial et la nature de la polarisation de l'excitation optique permettent de les peupler.

Des oscillations pourront être ainsi observées dans un spectre de photoionisation, soit avec une excitation Π et un état initial de $m_\ell = 0$, soit avec une excitation σ et un état initial de $|m_\ell| = 1$.

Il est à remarquer qu'aucune condition n'est imposée au nombre quantique orbital ℓ. Dans le cas particulier d'un état S ($\ell = m_\ell = 0$) on retrouve les résultats du modèle des forces d'oscillateurs.

En fait si l'existence des oscillations est indépendante de la valeur du nombre ℓ, on verra, par la suite, que leur taux de modulation dépend en revanche de façon notable de la valeur du nombre ℓ.

La stabilité des trajectoires résulte principalement du fait que le mouvement de l'électron a lieu uniquement du côté de la cathode. Comme on peut le voir sur la figure IV 1, qui représente le potentiel $V(z, \rho) = Fz - \frac{1}{(\rho^2 + z^2)^{\frac{1}{2}}}$ dans lequel se déplace l'électron, le mouvement suivant la direction ρ contraint l'électron à se trouver toujours près de l'axe Oz et l'empêche ainsi d'aller du côté de l'anode, ce qui lui confère une grande stabilité.

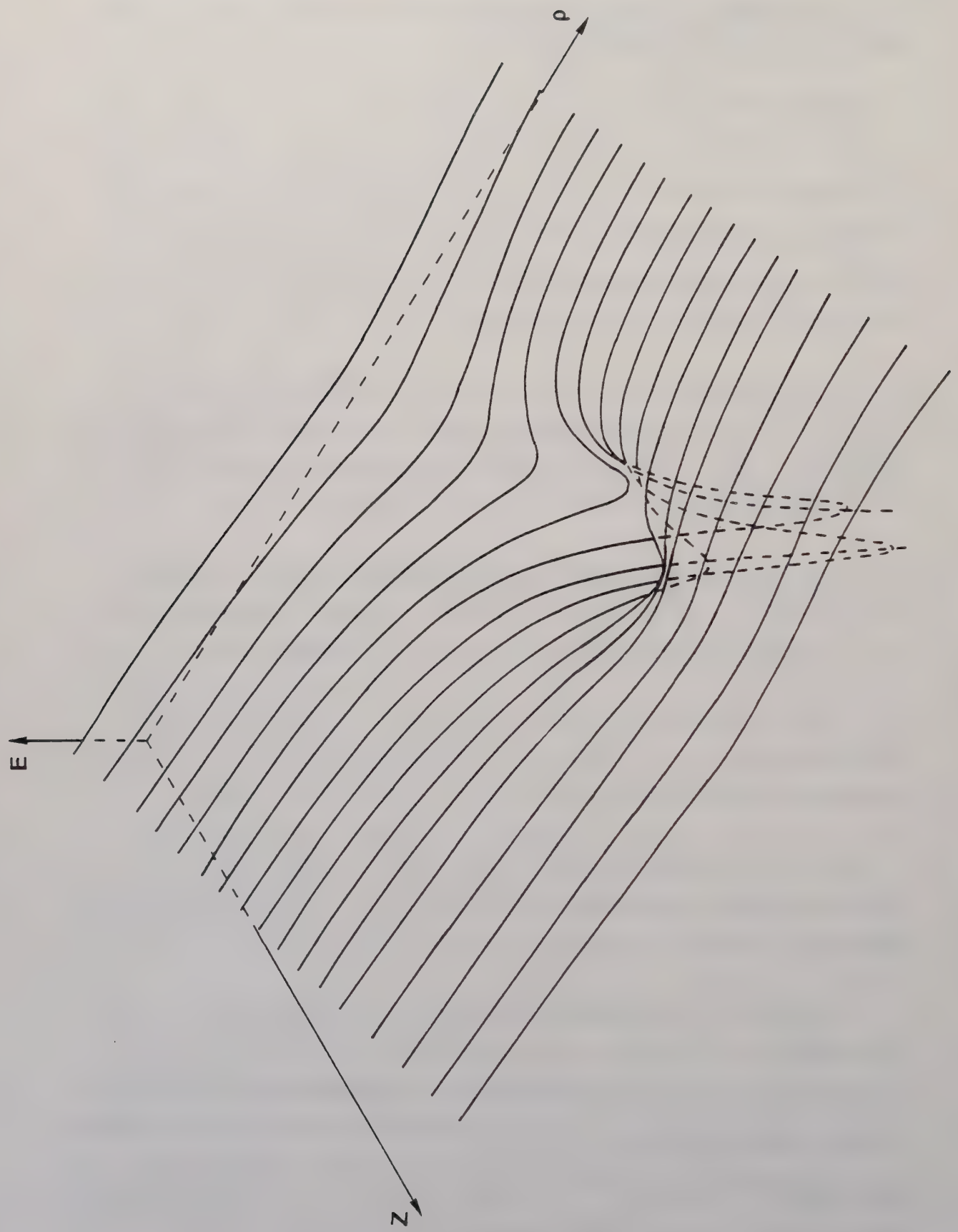


Figure IV-1 : Courbe d'énergie potentielle.

Par contre quand l'énergie E devient importante ($E \gg 0$) , le mouvement suivant la direction ρ tend à éloigner l'électron de l'axe Oz et l'ionisation a alors lieu instantanément (orbites instables).

On s'attend ainsi à ce que les résonances soient bien prononcées au voisinage de $E = 0$ et qu'elles soient complètement noyées dans le continuum dès qu'on est suffisamment loin de $E = 0$.

A partir de considérations de mécanique classique, on vient de montrer que, pour être stables, les trajectoires de l'électron doivent être situées du côté des z positifs (côté de la cathode) et concentrées sur l'axe Oz . On a ainsi ramené le problème du mouvement à trois dimensions au problème d'un électron se déplaçant dans un potentiel à une dimension et dont l'énergie potentielle $V(z)$ est telle que :

$$V(z) = \begin{cases} -\frac{1}{z} + Fz & z > 0 \\ \infty & z \leq 0 \end{cases}$$

La condition de quantification de Bohr-Sommerfield s'écrit :

$$\int_0^{z_0} \{E - V(z)\}^{1/2} \, dz = (n + \tfrac{1}{2}) \, \Pi$$

où z_0 désigne la racine de l'équation $E = V(z_0)$.

Cette condition permet de déterminer la position de ces résonances en fonction du champ F et leur espacement $\frac{dE}{dn}$ [82] :

$$\frac{dE}{dn} = \frac{2\pi}{\sqrt{2}} \left[\int_0^{z_0} \left(E - Fz + \frac{1}{z}\right)^{-\frac{1}{2}} dz \right]^{-1}$$

Au voisinage de $E = 0$, où $z_0 = \frac{1}{\sqrt{F}}$, on obtient un espacement égal à : $\frac{dE}{dn} = 0{,}042 \, F^{3/4}$ où F et $\frac{dE}{dn}$ sont exprimés respectivement en V/cm et en cm^{-1} .

On retrouve ainsi une loi en $F^{3/4}$ que des considérations beaucoup plus simples, dans lesquelles les résonances observées sont associées aux composantes $n_1 = n - 1$ de chaque multiplicité, ont permis d'établir. Toutefois ces deux lois en $F^{3/4}$ possèdent des coefficients numériques différents (écart de 15%) ; en effet la théorie des perturbations est insuffisante au voisinage de $E = 0$ car les calculs divergent à des ordres plus élevés.

L'étude du mouvement de l'électron en coordonnées paraboliques a montré que l'on pouvait ramener ce problème à l'étude du mouvement de deux particules de charges apparentes Z_1 et Z_2 se déplaçant suivant les coordonnées ξ et η ($Z_1 + Z_2 = 1$) . Dans le cas du spectre $|m_\ell| = 1$ les énergies potentielles effectives $V_1(\xi)$ et $V_2(\eta)$ des deux charges Z_1 et Z_2 ont des formes simples :

$$\begin{cases} V_1(\xi) = \dfrac{-Z_1}{2\xi} + \dfrac{F}{8}\xi \\ V_2(\eta) = \dfrac{-Z_2}{2\eta} - \dfrac{F}{8}\eta \end{cases}$$

Le spectre $|m_\ell| = 1$ donne, de la même manière que le spectre $m_\ell = 0$, l'espacement des résonances au voisinage de $E = 0$. Son étude est en revanche beaucoup plus simple en raison de l'absence des termes d'énergies potentielles centrifuges $\dfrac{m_\ell^2 - 1}{8\xi^2}$ et $\dfrac{m_\ell^2 - 1}{8\eta^2}$.

Les positions et les largeurs des résonances s'obtiennent en étudiant le mouvement lié suivant ξ et le mouvement libre suivant η .

Comme les résonances situées près de $E = 0$ correspondent à des valeurs élevées du nombre quantique n_1 et à une valeur $n_2 = 0$, c'est à dire à des valeurs de Z_1 peu différentes de l'unité ($Z_1 \simeq 1$ et $Z_2 \simeq 0$) ainsi qu'on peut le voir sur la figure I 5 , on trouve

une identité entre l'énergie potentielle $V_1(\xi)$ suivant la coordonnée ξ et l'énergie potentielle $V(z)$ suivant la coordonnée z (si on pose $\xi = 2z$) .

Il est également possible d'accorder une signification particulière aux états d'énergie positive pour lesquels Z_1 est peu différent de l'unité. En effet, pour les états $|m_\ell| = 1$, l'énergie cinétique effective $T(\eta)$ dans le mouvement suivant η est positive (pour de faible valeur de η), si Z_2 est positif, c'est à dire si $Z_1 = Z - Z_2$ est inférieur à l'unité dans le cas de l'hydrogène.

Comme Z_1 est une fonction décroissante de l'énergie (n_1 et $|m_\ell|$ fixés) , la condition $T(\eta \sim 0) > 0$ est vérifiée pour des énergies supérieures à $E_c(n_1, m_\ell)$, valeur qui est positive pour n_1 suffisamment grand. La densité d'état $C(n_1, |m_\ell|)$ qui est liée à la probabilité de présence de l'électron près du noyau, est non négligeable pour $E > E_c(n_1, m_\ell)$. Donc la valeur $Z_1 = 1$ correspond aux seuils d'ionisation des états $|m_\ell| = 1$ d'énergie positive. La position de ces seuils peut être déterminée en étudiant les états propres associés au potentiel $V(z)$.

En conclusion au voisinage de $E = 0$, l'étude par un traitement quantique de la position des résonances apparaissant à des énergies négatives et des seuils d'ionisation apparaissant à des énergies positives, se ramène à l'étude des états propres du problème à une dimension introduit à partir de considérations classiques.

On comprend pourquoi le modèle classique rend compte des résultats expérimentaux en ce qui concerne notamment la période des oscillations. Quant à l'existence des oscillations,on peut dire que les deux modèles quantique et classique conduisent aux mêmes résultats dans le cas de la photoionisation d'un état S par un seul photon, tout en les attribuant à des causes différentes, comme ce fut le cas dans les expériences faites sur l'atome de rubidium dans son état fondamental [62].

Pour le taux de modulation de ces oscillations, seul le calcul quantique de la densité de forces d'oscillateurs permet d'en donner un ordre de grandeur.

B - SECTION EFFICACE DE PHOTOIONISATION EN PRESENCE D'UN CHAMP ELECTRIQUE DE L'ETAT EXCITE $3\,^2P_{3/2}\ F = 3\ \ M_F = 3$ DE L'ATOME DE SODIUM (ALCALIN LEGER)

Comme on vient de le voir, les expériences faites sur les états nS ne permettent pas de trancher entre les deux interprétations - classique et quantique - des résultats expérimentaux.

Aussi était-il absolument nécessaire de partir, non plus d'un état S ($\ell = 0$) , mais d'un état excité $| n, \ell, m_\ell \rangle$ avec ℓ différent de zéro. Cette situation est relativement facile à réaliser dans la mesure où l'on soumet l'atome à une double excitation optique dans laquelle un premier rayonnement laser porte l'atome dans un état $| n, \ell, m_\ell \rangle$ bien défini et un deuxième faisceau laser le photoionise.

Moyennant un choix approprié des nombres quantiques ℓ, m_ℓ et de la nature de l'excitation optique (Π, σ^+ ou σ^-) on peut se trouver, comme on le verra dans le paragraphe suivant, dans une situation où le modèle des forces d'oscillateurs prévoit des oscillations, alors que le modèle classique n'en prévoit pas et vice-versa.

Le tableau ci-dessous présente, à titre d'exemple pour un état initial $\ell = 1$, les prédictions des deux modèles pour tous les cas possibles (choix du nombre quantique m_ℓ et choix de la polarisation de la lumière excitatrice).

$\lvert m_\ell \rvert$	Nature de l'excitation	Modèle des forces d'oscillateurs*	Modèle classique*
0	Π	NON	OUI
	σ^+	OUI	NON
	σ^-	OUI	NON
1	Π	OUI	NON
	σ^+	NON	NON
	σ^-	NON	OUI

* OUI : observation d'oscillations
NON : non observation d'oscillations

La grande difficulté d'une telle expérience provient de la bonne définition de l'état intermédiaire, c'est à dire de ses nombres quantiques ℓ et m_ℓ .

En effet, deux expériences différentes, utilisant une double excitation optique, ont été réalisées sur l'atome de sodium [80, 81]. Dans ces deux expériences l'atome de sodium était porté dans l'état intermédiaire $3\,^2\Sigma_{3/2}(3\,^2P_{\frac{1}{2}})$ qui était en fait un mélange d'états $\lvert \ell = 1, m_\ell = 0 \rangle$ et $\lvert \ell = 1, m_\ell = \pm 1 \rangle$ et non pas un état pur.

De plus les résultats de ces deux expériences sont quelque peu différents, tout au moins en ce qui concerne le taux de modulation qui dans un cas [81] dépend de la nature du niveau intermédiaire ($^2P_{\frac{3}{2}}$ ou $^2P_{\frac{1}{2}}$) , alors que dans l'autre cas [80] il n'en dépend pas du tout.

Quant aux interprétations théoriques de ces résultats, elles sont totalement opposées.

Dans un cas [81] l'analyse des résultats expérimentaux concernant les sections efficaces de photoionisation des niveaux $3\ ^2P_{\frac{3}{2}}$ et $3\ ^2P_{\frac{1}{2}}$ montre que les oscillations observées sont dues uniquement au fait que l'on excite les états $m_\ell = 0$, ce qui est en accord avec les résultats du modèle de la densité d'états.

Dans l'autre cas [80] , où les conclusions sont plus nuancées, les oscillations observées ont été identifiées aux composantes Stark de nombres quantiques $n_1 = n - 1$, $n_2 = 0$ et $m_\ell = 0$; comme le faisceau laser ionisant est polarisé parallèlement au champ électrique (excitation Π) , on en déduit que les oscillations apparaissent seulement lors des transitions $m_\ell = 0 \rightarrow 0$, c'est à dire lorsqu'on excite les états $m_\ell = 0$ sans respecter les règles de parité déduites du modèle des forces d'oscillateurs.

En conclusion, on peut dire que ces deux expériences n'apportent pas de preuves assez tangibles sur l'origine des oscillations du fait de la non pureté de l'état intermédiaire. Seule une meilleure définition de l'état intermédiaire pourrait apporter une réponse à notre problème.

Pour cela, nous utiliserons la technique du pompage optique Zeeman, qui se prête favorablement au niveau $3\ ^2P_{\frac{3}{2}}$ de l'atome de sodium, dont nous allons étudier le spectre de photoionisation en présence d'un champ électrique, et cela pour différents types d'excitation (σ^+, σ^- et Π).

Avant de présenter et d'analyser les résultats expérimentaux obtenus, nous donnons tout d'abord une description du dispositif expérimental utilisé.

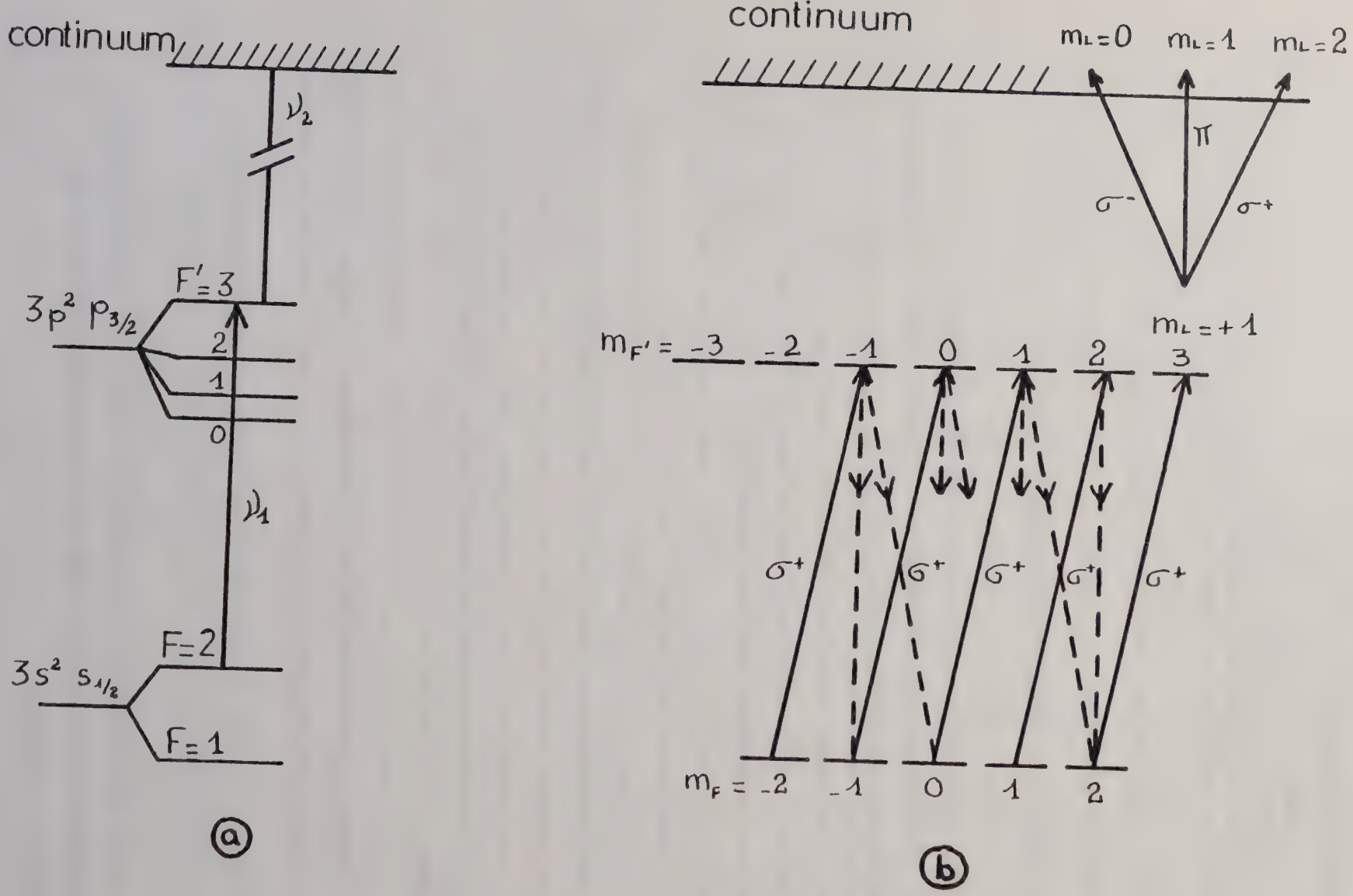


FIGURE IV-2 : a - Transitions et niveaux atomiques intervenant dans l'expérience.

b - Pompage optique Zeeman.

B 1. DISPOSITIF EXPERIMENTAL

B 1.1. Pompage optique

On peut tirer profit du pompage optique Zeeman dans le premier étage de l'excitation optique pour obtenir des atomes dans le niveau $3\,^2P_{3/2}$ ayant tous comme valeur de m_ℓ , $m_\ell = 1$. Ceci a été décrit en détail et utilisé pour obtenir de vrais systèmes à deux niveaux [83,84].

Les atomes de sodium d'un jet atomique sont excités à partir du sous niveau $3\,^2S_{\frac{1}{2}}$ F=2 de l'état fondamental vers le sous niveau hyperfin $F' = 3$ de l'état excité $3^2P_{\frac{3}{2}}$ par un rayonnement laser de longueur d'onde convenable. En effet les structures hyperfines de l'état fondamental et de l'état excité sont résolues parce que l'excitation transverse du jet atomique permet de réduire de façon notable l'effet Doppler (figure IV 2a) .

Si la lumière est polarisée σ^+ , les processus successifs d'absorption et d'émission spontanée réalisent un pompage Zeeman : au bout de quelques durées de vie de l'état excité $3^2P_{\frac{3}{2}}$, toute la population du sous niveau hyperfin $F = 2$ de l'état fondamental $3^2S_{\frac{1}{2}}$ se trouve regroupée dans le sous niveau Zeeman $F = 2$ $m_F = 2$ de ce même état fondamental et, comme le rayonnement est polarisé σ^+ , seul le sous niveau $F'= 3$ $m_{F'} = 3$ de l'état $3^2P_{\frac{3}{2}}$ est excité (figure IV 2b).

Or, pour ce sous niveau particulier, m_ℓ est un bon nombre quantique et vaut :

$$m_\ell = 1$$

Ainsi donc tous les atomes de sodium qui interagissent avec le rayonnement laser du deuxième étage sont préparés dans le sous niveau

$$3\,^2P_{\frac{3}{2}} \quad F = 3 \quad m_F = 3 \quad m_j = \frac{3}{2} \quad m_\ell = 1$$

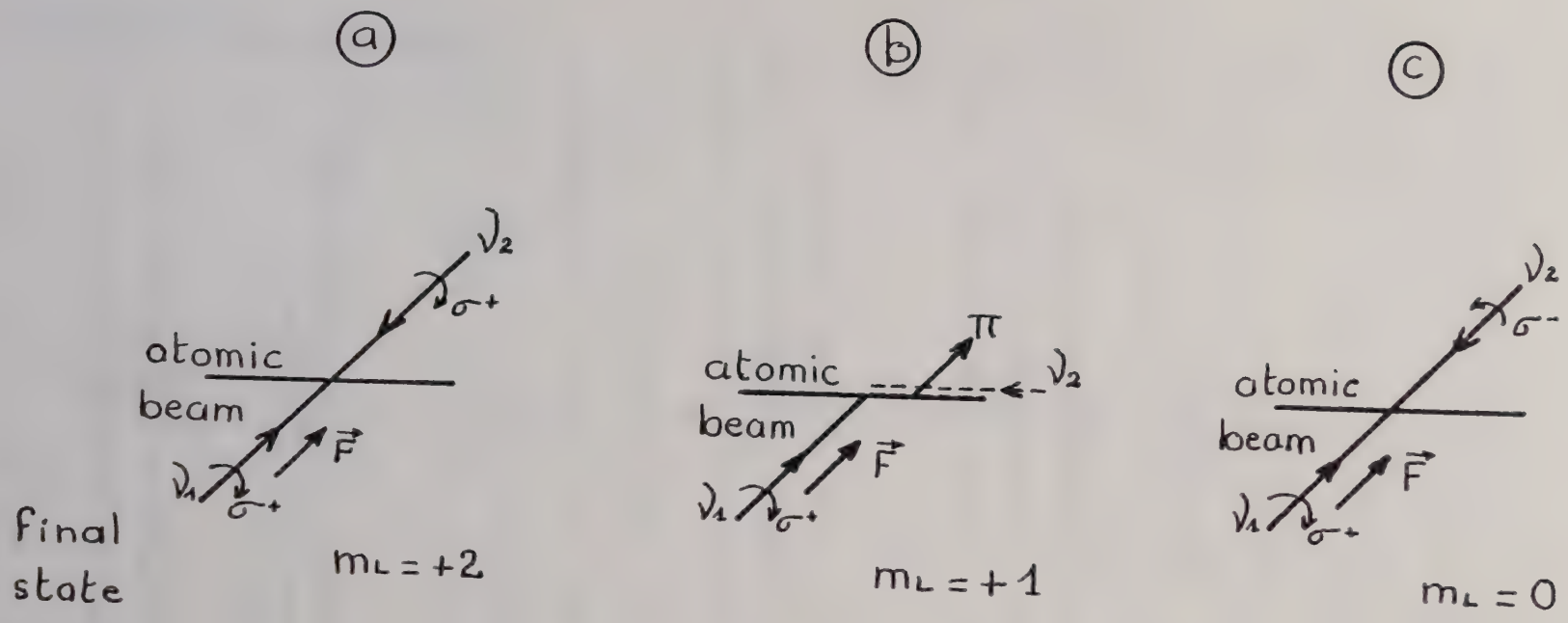


FIGURE IV-3

Les trois différentes géométries possibles pour l'excitation optique à deux étages. Les états de Rydberg que l'on peut atteindre ont une valeur de m_ℓ bien déterminée.

(a) $m_\ell = 2$

(b) $m_\ell = 1$

(c) $m_\ell = 0$

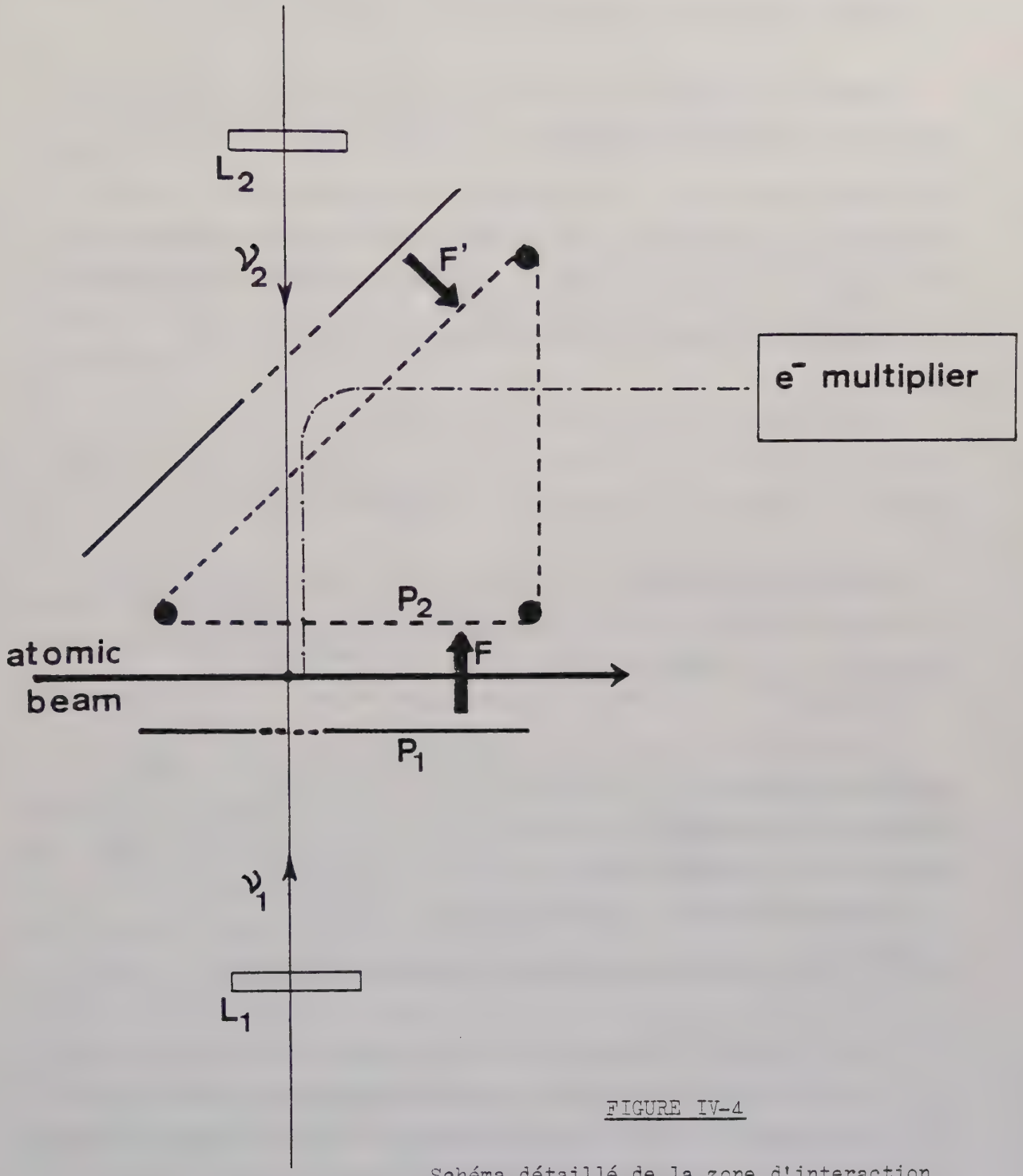


FIGURE IV-4

Schéma détaillé de la zone d'interaction.

B 1.2. Choix et réalisation des polarisations expérimentales

Le but de cette expérience est d'étudier la dépendance en m_ℓ de la section efficace de photoionisation de l'atome de sodium.

Comme indiqué sur la figure IV 3 , le rayonnement lumineux qui induit la transition correspondant au premier étage, de fréquence ν_1 est toujours polarisé σ^+ par rapport à la direction de $\vec{F}$ pris comme axe de quantification. Un pompage optique Zeeman s'établit et le sous niveau $F'=3$ $m_{F'} = 3$ $m_\ell = 1$ devient rapidement le seul sous niveau peuplé de l'état intermédiaire $3\,^2P_{\frac{3}{2}}$ $F'= 3$.

La direction de propagation et la polarisation du second faisceau laser (rayonnement pulsé de fréquence ν_2) peuvent être choisies parmi les trois possibilités indiquées sur la figure IV 3.

Ainsi des excitations σ^+ (figure IV 3a), Π (figure IV 3b) ou σ^- (figure IV 3c) permettent d'atteindre des états très excités pour lesquels $|m_\ell|$ vaudra respectivement 2 , 1 ou 0 .

La géométrie de la zone d'interaction, que nous avons utilisée dans les expériences de photoionisation par champ à un photon, n'est plus adaptée aux expériences d'excitation à deux photons dans lesquelles les rayonnements lasers ont des polarisations bien définies (à l'exception du cas où les deux faisceaux lumineux ν_1 et ν_2 doivent être polarisés linéairement : excitation $\Pi - \Pi$).

Les différentes configurations de la figure IV 3, dans lesquelles la trajectoire des atomes ionisés est pratiquement confondue avec les faisceaux lumineux, ne pourront être réalisées que si la région d'interaction a une forme analogue à celle de la figure IV 4.

Le champ ionisant F est appliqué entre les armatures P_1 et P_2

d'un condensateur.

P_1 est une plaque métallique munie d'une grille également métallique en son centre pour permettre le passage des faisceaux lumineux.

P_2 est une face d'un prisme équipotentiel obtenu en bobinant un fil métallique sur trois tiges filetées (perpendiculaires au plan de la figure.

Une troisième plaque P_3 également munie d'une grille, parallèle à la face hypothénuse du prisme équipotentiel et isolée de la masse, permet de créer le champ F' qui défléchit ainsi les ions vers le multiplicateur d'électrons.

B 1.3. Montage expérimental

La figure IV 5 représente le shéma d'ensemble du montage expérimental. Les atomes d'un jet atomique de sodium interagissent avec deux lasers à colorant au point M . A cet endroit le diamètre du jet atomique est d'environ 5 mm et sa densité de l'ordre de 10^8 atomes/cm^3 .

Le premier étage de l'excitation optique est obtenu avec un laser à colorant monomode commercial fonctionnant en régime continu (Coherent model 599). La lumière de ce faisceau laser est polarisée circulairement σ^+ par la lame quart d'onde L_1 . La lumière de fluorescence du jet atomique est détectée par un photomultiplicateur (P.M) et le signal de sortie sert à asservir la fréquence du laser sur la transition atomique ($3\,^2S_{\frac{1}{2}}$ F = 2 → $3\,^2P_{\frac{3}{2}}$ F'= 3) . La puissance P du rayonnement laser qui interagit avec le jet permet de maintenir en permanence une proportion importante de la population atomique dans le niveau supérieur $3\,^2P_{\frac{3}{2}}$ (le paramètre de saturation de la transition est de l'ordre de 8).

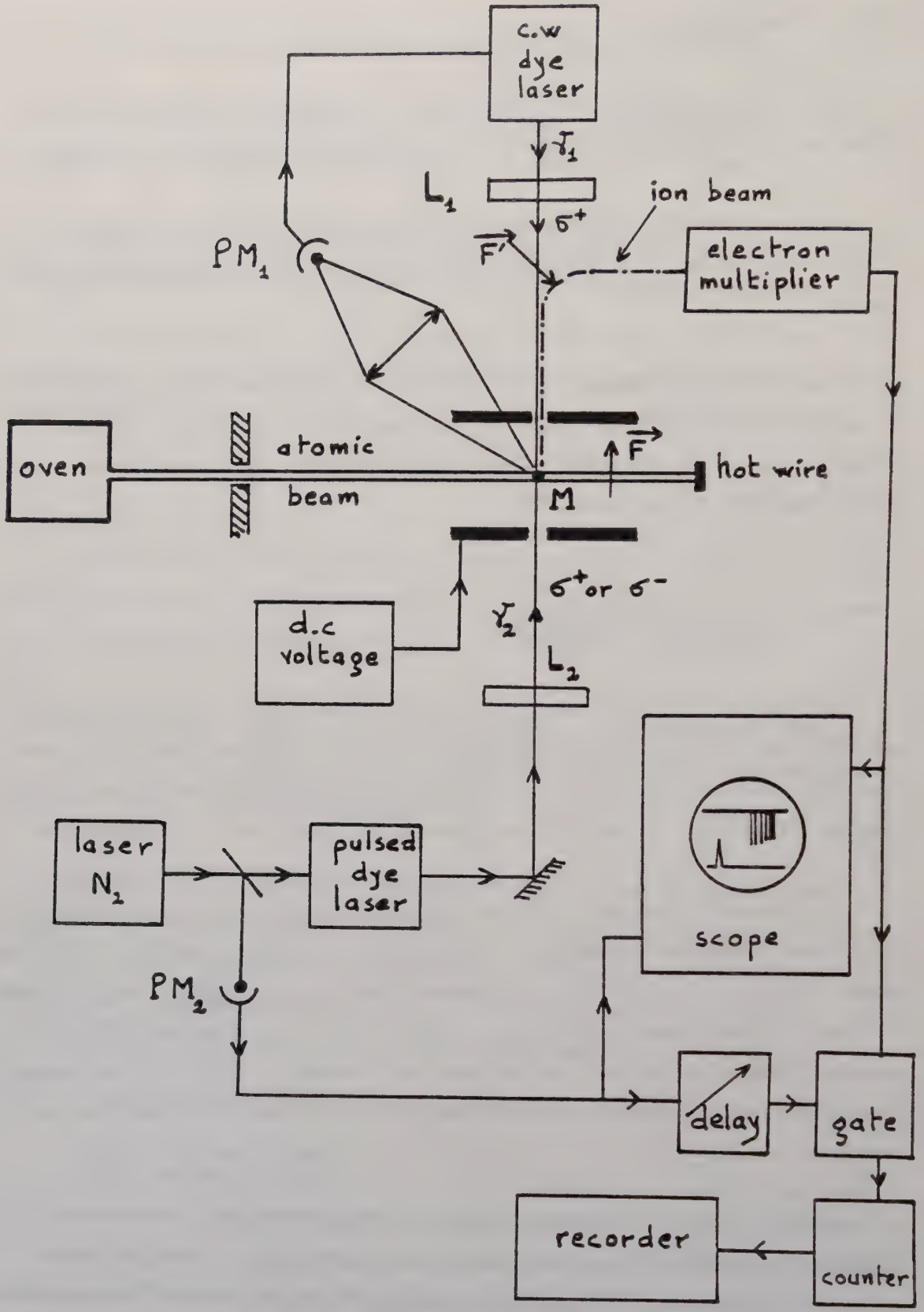


FIGURE IV-5 : Schéma général du montage expérimental.

Le second étage de l'excitation optique, qui porte les atomes de sodium de l'état $3\,^2P_{\frac{3}{2}}$ $F' = 3$ $m_\ell = 1$ vers des états $m_\ell = 0$, 1 ou 2, est obtenu de la façon suivante : un laser à azote délivre des impulsions U.V ($\lambda \simeq 337$ nm), d'une durée de 7 ns et d'une puissance crête de 500 kW , qui servent de pompe pour un laser à colorant [85].

Une lentille permet de focaliser le faisceau pompe dans la cellule à colorant ; la cavité est fermée à une extrémité par un miroir plan transparent (4%) et à l'autre par un réseau présentant un angle de miroitement (nombre de traits par mm = 600) précédé par un télescope dont le rôle est de permettre l'éclairement d'un grand nombre de traits du réseau afin d'obtenir un rayonnement laser d'une largeur spectrale aussi fine que possible.

Le colorant utilisé est soit du diphénylstilbène (D.P.S.) en solution dans du benzène dans le cas du sodium, soit de la coumarine 481 en solution dans du dioxane dans le cas du rubidium qui sera étudié par la suite.

Un moteur synchrone, suivi d'une très forte démultiplication, fait tourner très lentement le réseau R de la cavité du laser à colorant ; cette rotation du réseau permet d'obtenir un rayonnement de sortie dont la longueur d'onde est accordable dans le domaine 405 - 420 nm ou 490 - 510 nm selon le colorant utilisé.

Les impulsions laser ainsi obtenues ont une durée de 5 nanosecondes environ, une fréquence de répétion de 10 Hz (fixée par le laser à azote), une puissance crête de l'ordre de quelques kilowatts et une largeur spectrale de 0,2 cm^{-1} environ.

Le faisceau lumineux pulsé est focalisé sur le jet atomique et forme à cet endroit une petite tache entièrement comprise à l'intérieur du faisceau laser continu (jaune ou infrarouge) de telle sorte que les atomes du jet dans le niveau $^2P_{\frac{3}{2}}$ qui interagissent avec le rayonnement

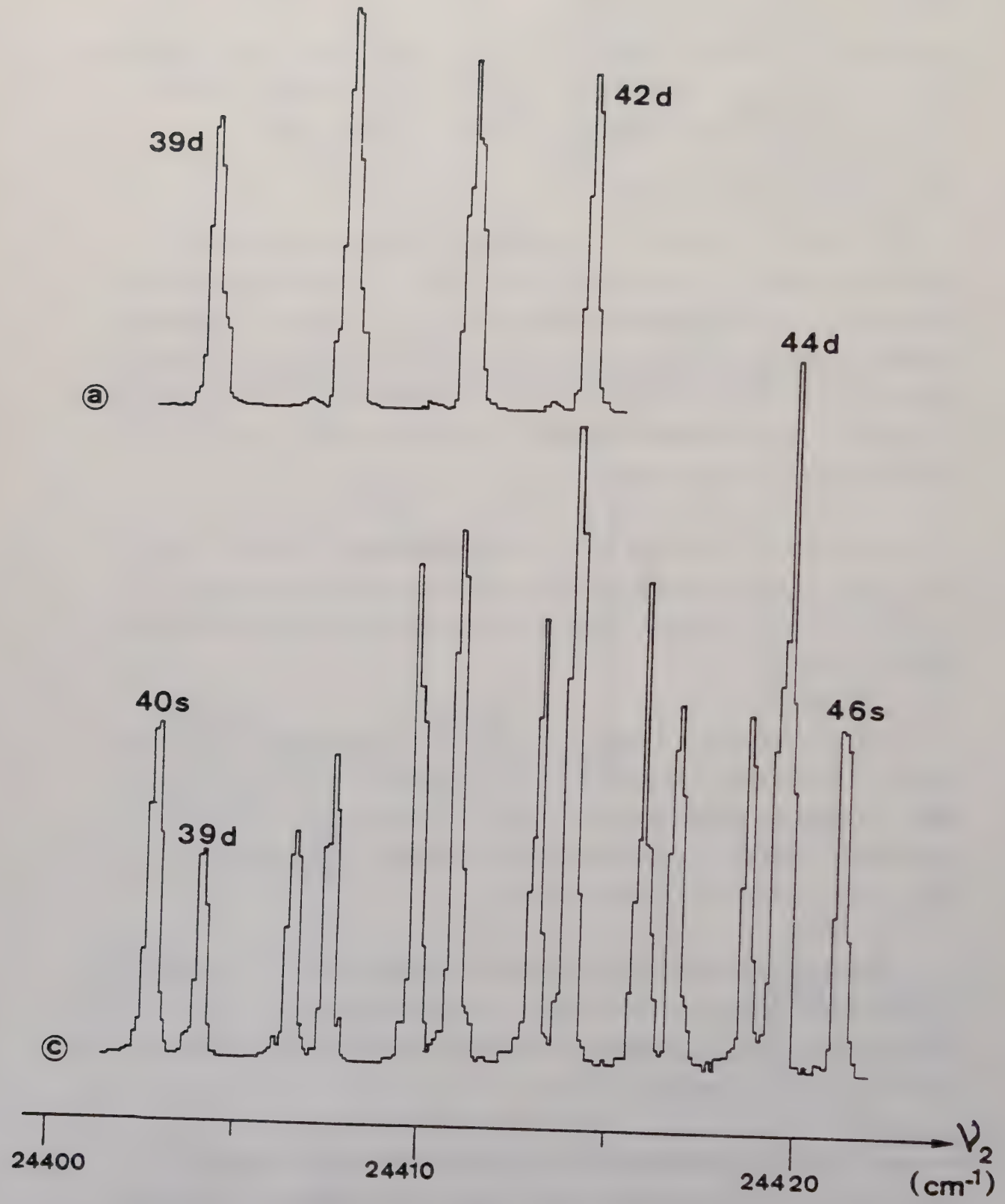


FIGURE IV-6

Enregistrement du signal d'ions en fonction de la fréquence du laser pulsé.
(a) Excitation $\sigma^+\sigma^+$ (m_ℓ=2) (b) Excitation $\sigma^+\sigma^-$ (m_ℓ=0)

pulsé sont tous dans le sous niveau Zeeman $F' = 3 \quad m_{F'} = 3$ (ou $F' = 4$ $m_{F'} = 4$) .

Cette lumière pulsée est polarisée circulairement σ^+ ou σ^- (par rapport à la direction du champ électrique $\vec{F}$ indiqué sur la figure IV 5) à travers un parallélépipède de Fresnel ou bien polarisée linéairement et parallèlement à $\vec{F}$ (excitation Π).

Dans le cas d'une excitation $\sigma^+\sigma^+$ ou $\sigma^+\sigma^-$, les deux faisceaux sont colinéaires, perpendiculaires au jet atomique et se propagent en sens opposé ; en revanche, lors de l'excitation $\sigma^+\Pi$, le laser continu reste toujours perpendiculaire au jet alors que le laser pulsé se propage colinéairement au jet atomique.

Afin de juger de l'efficacité du pompage optique Zeeman et du degré de polarisation des faisceaux lumineux, nous avons réalisé une expérience d'ionisation par champ sur les états de Rydberg de l'atome de sodium et de rubidium.

Dans le cas où les atomes ont bien été préparés dans l'état $m_\ell = 1$ du niveau intermédiaire $3\,^2P_{\frac{3}{2}}$, l'excitation optique du second étage permet d'atteindre seulement les niveaux de Rydberg nD dans le cas où elle est polarisée σ^+ , ou les niveaux nS et nD dans le cas d'une polarisation σ^- .

La figure IV 6 permet de comparer dans le cas de l'atome de sodium les signaux obtenus avec ces deux polarisations et pour la même plage de fréquence. Seuls les pics correspondants aux niveaux nD apparaissent dans l'enregistrement (a) (cas d'une excitation $\sigma^+\sigma^+$ qui permet d'atteindre les états $m_\ell = 2$), alors que ceux correspondant aux niveaux nD et nS apparaissent dans l'enregistrement (c) (cas de l'excitation $\sigma^+\sigma^-$ qui permet d'atteindre les états $m_\ell = 0$).

On peut remarquer toutefois qu'il subsiste des traces de niveau nS

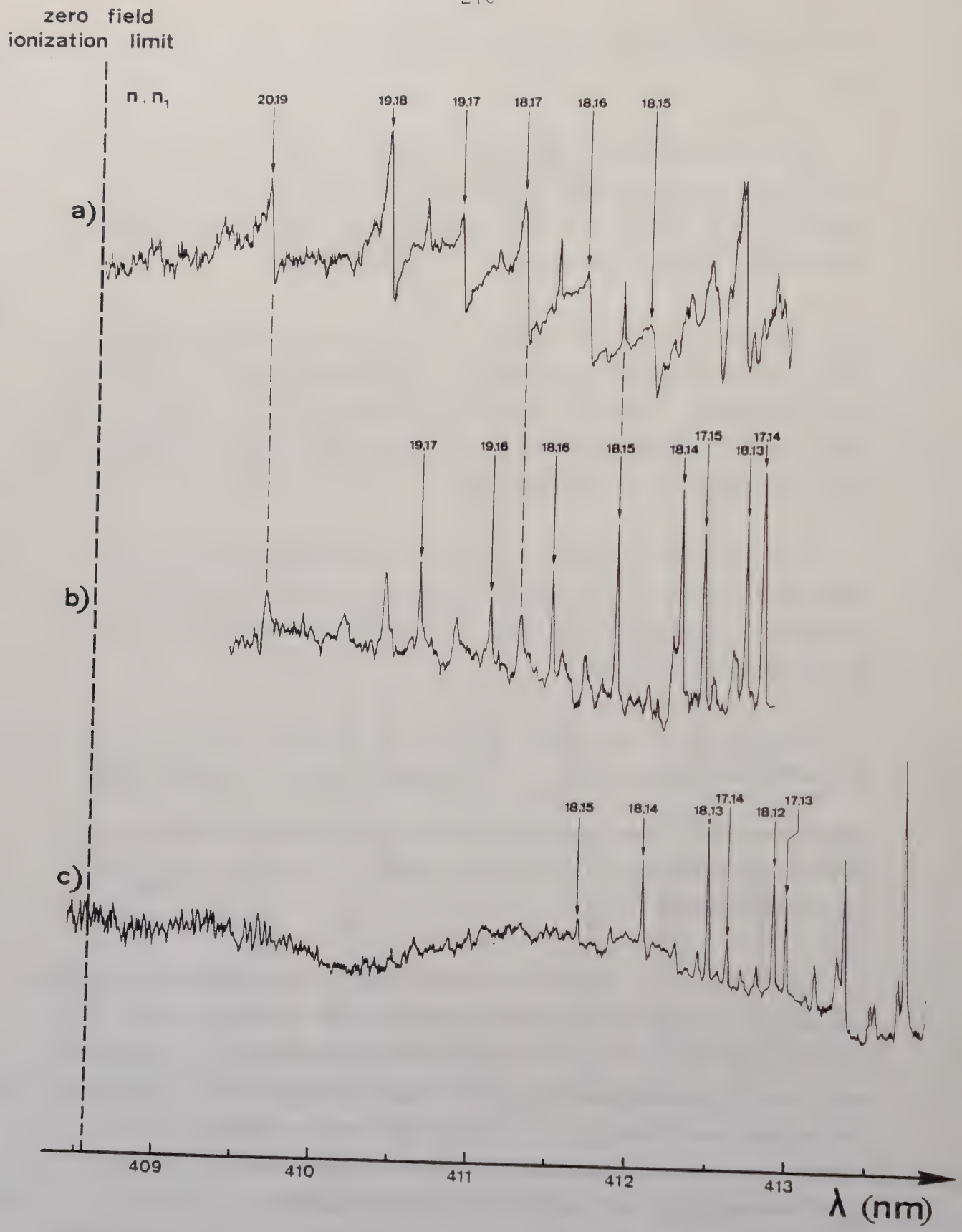


FIGURE IV-7 : Spectres de photoionisation de l'atome de sodium (F = 9950 V/cm) pour différentes polarisations du rayonnement photoionisant : a) σ^- ; b) Π ; c) σ^+.

sur l'enregistrement (a) que l'on peut attribuer probablement à une légère dépolarisation de la lumière lors de la traversée des hublots en quartz de l'appareil de jet atomique.

L'excitation $\sigma^+\Pi$ en champ nul des états de Rydberg (géométrie de la figure IV 3b) peuple uniquement les états nD $m_\ell=1$ de la même manière que l'excitation $\sigma^+\sigma^+$ peuple les seuls états nD $m_\ell=2$.

En conséquence les spectres $\sigma^+\Pi$ et $\sigma^+\sigma^+$ sont identiques, et on ne peut pas alors affirmer que la configuration $\sigma^+\Pi$ excite seulement les états $m_\ell = 1$; toutefois des expériences de détermination d'énergies critiques d'ionisation ont permis de vérifier que les excitations $\sigma^+\sigma^+$, $\sigma^+\Pi$ et $\sigma^+\sigma^-$ conduisent respectivement à des états $m_\ell = 2$, 1 et 0.

B 2. SPECTRES DE PHOTOIONISATION DANS LE DOMAINE DES ENERGIES NEGATIVES PROCHES DE E = 0

La figure IV 7 montre des enregistrements assez typiques obtenus au voisinage de $E = 0$ ($E < 0$) dans un champ $F = 9950$ V/cm et pour les polarisations différentes σ^-, Π et σ^+ du rayonnement ionisant ν_2 , la polarisation du rayonnement ν_1 excitant l'état $3\,^2P_{\frac{3}{2}}$ étant du type σ^+ . Ces trois types d'excitations portent les atomes de sodium dans des états qui diffèrent par la valeur de $|m_\ell|$: $|m_\ell| = 0$ pour l'excitation $\sigma^+\sigma^-$, $|m_\ell| = 1$ pour l'excitation $\sigma^+\Pi$ et $|m_\ell| = 2$ pour l'excitation $\sigma^+\sigma^+$.

Nous allons tout d'abord dégager les caractéristiques principales de ces trois spectres avant d'identifier les résonances observées.

B 2.1. Forme des raies. Evolution avec $|m_\ell|$

Les formes des résonances sont très différentes dans les trois spectres.

Le spectre $\sigma^+\sigma^-$ ($m_\ell = 0$) comporte essentiellement des résonances larges ($\Gamma \simeq 2$ à $3\ cm^{-1}$) fortement dissymétriques, ressemblant à des profils de Fano et possédant un minimum très prononcé d'un côté de la résonance. Quand on se rapproche de $E = 0$ le caractère dissymétrique s'atténue et les résonances finissent par ne plus se détacher du fond de photoionisation quand on est au-delà de $E = 0$ ($E > 0$) .

Outre les raies dissymétriques, le spectre $m_\ell = 0$ contient aussi des résonances d'intensité moyenne, d'aspect presque symétrique et de largeur plus faible ($\Gamma \sim 1\ cm^{-1}$) .

Dans le spectre $\sigma^+\Pi$ ($|m_\ell| = 1$) les résonances sont moins larges et plus symétriques que celles observées dans le spectre $\sigma^+\sigma^-$: en effet on peut voir des raies fines et intenses ($\Gamma \sim 1$ à $2\ cm^{-1}$) associées à des résonances légèrement dissymétriques et peu intenses.

Enfin le spectre $\sigma^+\sigma^+$ ($|m_\ell| = 2$) est constitué uniquement de raies très fines ($\Gamma \simeq 0{,}5\ cm^{-1}$) . On note une absence totale de raies dans un grand domaine d'énergie voisin de la limite d'ionisation sans champ ($-200\ cm^{-1} < \Delta E < 0$ pour $F = 9950\ V/cm$) alors que dans ce même domaine d'énergie les spectres $\sigma^+\sigma^-$ et $\sigma^+\Pi$ possèdent des structures.

La grande différence entre les spectres $m_\ell = 0$, $|m_\ell| = 1$ d'une part, et $|m_\ell| = 2$, montre que l'état intermédiaire est un pur sous niveau Zeeman $F' = 3$ $M'_F = 3$ $m_\ell = 1$, sinon le spectre $|m_\ell| = 2$ aurait été pollué par des résonances semblables à celles observées dans les spectres $m_\ell = 0$ et $|m_\ell| = 1$.

D'autres preuves expérimentales de la bonne définition de l'état intermédiaire seront exposées ultérieurement, mais on peut d'ores et déjà dire que c'est dans l'état final que $|m_\ell|$ est mal défini.

Les différentes formes de raies observées dans les trois spectres

peuvent être interprétées en faisant appel aux deux mécanismes d'ionisation différents rencontrés dans les spectres de photoionisation des atomes alcalins et décrits au chapitre I.

Le premier, dû à l'effet tunnel, permet de rendre compte de l'ionisation dans l'hydrogène. Il est associé à des profils symétriques et son importance dépend peu de la valeur $|m_\ell|$ étudiée.

Le second provient du caractère non coulombien du potentiel central agissant sur l'électron optique dans le cas d'un alcalin . Les états quasidiscrets $n\ n_1\ m_\ell$, apparaissant dans l'hydrogène, sont alors couplés aux autres états du continuum caractérisés par la même valeur $|m_\ell|$, mais par des valeurs de n_1 plus faibles. Les conséquences de ce couplage sont d'une part l'élargissement spectral de ces niveaux quasidiscrets, c'est à dire une augmentation de leur taux d'ionisation, et d'autre part l'apparition de profils de Fano dissymétriques.

L'importance de ce deuxième mécanisme d'ionisation dépend de la valeur de $|m_\ell|$ étudiée, car un état de $|m_\ell|$ donné met en jeu des niveaux de moment cinétique orbital $\ell > |m_\ell|$, c'est à dire des niveaux dont le caractère non hydrogénoïde croit quand la valeur de ℓ décroit.

L'importance relative de ces deux mécanismes d'ionisation dépend de la valeur de $|m_\ell|$ des états étudiés. En effet dans une région spectrale donnée les états, dont la valeur de $|m_\ell|$ est élevée, ont un caractère essentiellement hydrogénoïde et s'ionisent par effet tunnel ; ils sont donc plus stables que les états de faible valeur de $|m_\ell|$ qui apparaissent dans le même domaine d'énergie et pour lesquels l'ionisation se fait par couplage avec les états du continuum.

Ces prédictions théoriques permettent de rendre compte de nos résultats expérimentaux. En effet le caractère non hydrogénoïde est particulièrement marqué dans le spectre $\sigma^+\sigma^-$ ($m_\ell = 0$) , où il se manifeste par l'apparition de résonances dissymétriques.

Au chapitre III, partie D, nous avons analysé les profils de deux de ces résonances, et nous avons pu déterminer les valeurs des paramètres de Fano q et Γ.

Les largeurs de ces résonances sont voisines de $\Gamma^{o}_{exp} = 2$ à 3 cm^{-1} ; en traitant l'interaction entre les états quasidiscrets et les continuums, mais en négligeant toute perturbation des continuums due au caractère non hydrogénoïde du potentiel central, on a pu évaluer ces largeurs à $\Gamma^{o}_{th} \sim 6$ cm^{-1} dans le cas du sodium, valeur en bon accord avec Γ^{o}_{exp} et nettement supérieure aux valeurs obtenues dans l'hydrogène (inférieure à $0,5$ cm^{-1} . Voir tableau I).

Dans le cas des états $| m_\ell | = 1$ de l'atome de sodium, un même calcul conduit à des largeurs $\Gamma'_{th} \sim 0,05$ cm^{-1}.

Remarquons que la structure du fond continu n'est pas monotone dans notre paramétrisation, mais varie de façon discontinue entre deux résonances : on peut justifier une telle structure pour le fond de photoionisation en se rappelant que l'énergie critique d'ionisation parabolique croit avec n_1 . En effet entre deux résonances successives il existe un seuil d'ionisation, donc un nouveau continuum qui s'ajoute au fond de photoionisation.

Ainsi le seuil $n_1 = 18$ $m_\ell = 0$ a une énergie critique E^{p}_{c} (18, 0) ~ -100 cm^{-1} intermédiaire entre celles des deux résonances caractérisées par les nombres quantiques (n, n_1, m_ℓ) (19, 18, 0) et (20, 19, 0) situées respectivement à -111 cm^{-1} et -65 cm^{-1} .

B 2.2. Identification des résonances

Pour identifier les résonances, c'est à dire les caractériser par des valeurs des nombres quantiques n, n_1 et m_ℓ , on peut se placer dans l'approximation hydrogénoïde, parce que le potentiel central agis-

$(n$	n_1	$m_\ell)$	E_R (cm^{-1})	Γ (cm^{-1})	$\sqrt{C^{m_\ell}_{n_1}}$ $(a\text{-}N \equiv a\times 10^{-N})$
21	20	0	-20.98	3.47	.1678-5
* 20	19	0	-64.66	0.568	.382 - 5
20	18	0	-95.36	4.03	.1753-5
* 19	18	0	-110.77	8.62×10^{-3}	.4009-4
* 19	17	0	-139.20	0.270	.6342-5
* 18	17	0	-162.39	4.69×10^{-6}	.2074-2
19	16	0	-167.86	1.58	.2601-5
* 18	16	0	-187.73	5.51×10^{-4}	.1831-3
* 18	15	0	-213.23	1.47×10^{-2}	.3342-4
20	18	1	-80.04	1.63	.344 - 6
* 19	17	1	-124.73	0.056	.257 - 5
20	17	2	-94.28	3.78	.1480-7
19	16	2	-138.52	0.18	.8157-7
19	15	2	-167.26	1.34	.4976-7
* 18	15	2	-187.36	3.12×10^{-4}	.3108-5

* Raies identifiées dans le spectre de photoionisation de Na .

TABLEAU I

sant sur l'électron optique diffère peu du potentiel coulombien dans le cas des états très excités du sodium ($E \sim 0$) .

Pour les résonances les plus larges nous avons effectué un calcul exact permettant de connaître leur position et leur largeur . Les valeurs obtenues (position, largeur, densité partielle d'états maximale) pour les états quasistables très excités sont présentées dans le tableau I.

D'après ce tableau, on peut voir qu'il subsiste des résonances relativement fines (largeur inférieure à environ $1\ cm^{-1}$) jusqu'au voisinage de $E = 0$, et que les résonances les plus fines au voisinage de $E = 0$ appartiennent au spectre $m_\ell = 0$. En effet les résonances les plus étroites observées au voisinage de $E = 0$ sont respectivement localisées à $E = -65\ cm^{-1}$, $E = -125\ cm^{-1}$ et $E = -139\ cm^{-1}$ pour les spectres $|m_\ell| = 0, 1$ et 2 .

Pour les résonances plus étroites, un calcul au quatrième ordre de la théorie des perturbations est suffisant pour déterminer la position de ces résonances, parce que l'ionisation par effet tunnel est négligeable.

Nous n'avons étudié que les résonances associées à des valeurs élevées du nombre quantique n_1 , car les autres résonances correspondent à des taux d'ionisation très élevés (supérieurs à $10^{11}\ s^{-1}$).

Dans le cas du spectre $\sigma^+\sigma^-$ le calcul a permis d'identifier uniquement les raies dissymétriques. Elles correspondent aux composantes les plus stables $n_1 = n - 1$ et $n_1 = n - 2$ des multiplicités $n = 20, 19$ et 18 . En revanche dans le spectre $\sigma^+\Pi$ seules les résonances les plus intenses et étroites ont pu être identifiées : il s'agit des états $n_1 = n - 2$ et $n_1 = n - 3$ des multiplicités $n = 19, 18$ et 17 .

Remarquons que les résonances de largeur supérieure à $1,5\ cm^{-1}$

dans le modèle hydrogénoïde, comme c'est le cas des résonances (21, 20, 0), (20, 18, 0), (19, 16, 0) et (20, 18, 1) , ne sont pas observées dans le spectre du sodium. En effet ces états ont un taux d'ionisation élevé (supérieur à $3 \times 10^{11} s^{-1}$) et apparaissent sous forme de résonances très larges dans le fond de photoionisation. De plus ces résonances sont associées à des valeurs assez faibles de la densité partielle d'états (tableau I), si bien que leur probabilité d'excitation à partir de l'état fondamental est pratiquement nulle.

Ces mêmes remarques permettent d'expliquer pourquoi le spectre $\sigma^+\sigma^+$ ($|m_\ell| = 2$) ne présente aucune structure jusqu'à 200 cm^{-1} au dessous de la limite d'ionisation sans champ.

En effet les résonances (20, 17, 2) et (19, 15, 2) sont relativement larges dans l'approximation hydrogénoïde, et la densité partielle d'états associée aux résonances (20, 17, 2), (19, 15, 2) et (19, 16, 2) est si faible que la probabilité d'excitation de ces états, à partir du niveau $3\ ^2P_{\frac{3}{2}}$ peut être considérée comme négligeable (tableau I).

Il en résulte que la première résonance observée dans le spectre $|m_\ell| = 2$ est la résonance (18, 15, 2) , qui n'est d'ailleurs pas très intense (figure IV 7).

Il reste toutefois que seule la moitié des résonances a pu être identifiée dans chacun des deux spectres $m_\ell = 0$ et $|m_\ell| = 1$.

On peut cependant remarquer que les positions expérimentales des résonances sont identiques dans les deux spectres $\sigma^+\sigma^-$ et $\sigma^+\Pi$, ce qui fait que les énergies des états semblent présenter une dégénérescence vis à vis de $|m_\ell|$. Ainsi aux états dissymétriques identifiés dans le spectre $\sigma^+\sigma^-$ correspondent les résonances peu intenses et légèrement dissymétriques non identifiées dans le spectre $\sigma^+\Pi$.

En revanche les résonances étroites attribuées aux états $|m_\ell| = 1$

du spectre $\sigma^+\Pi$ sont associées aux résonances symétriques non identifiées du spectre $\sigma^+\sigma^-$. On peut donc dire que les séries de raies non identifiées dans le spectre $\sigma^+\sigma^-$ ($m_\ell = 0$) sont en fait des raies associées à la valeur $|m_\ell| = 1$.

De même les raies non identifiées dans le spectre $\sigma^+\Pi$ ($|m_\ell| = 1$) correspondent à des états $m_\ell = 0$, ce qui laisse à penser que les excitations $\sigma^+\sigma^-$ et $\sigma^+\Pi$ ne portent pas les atomes de sodium dans des états de nombre quantique $|m_\ell|$ bien défini. Ainsi donc $|m_\ell|$ n'est pas un bon nombre quantique.

Comme dans le cas des spectres $\sigma^+\sigma^-$ et $\sigma^+\Pi$, seule la moitié des résonances peut être attribuée aux états $|m_\ell| = 2$. Quant aux résonances non identifiées, elles appartiennent au spectre $|m_\ell| = 1$. Elles ne peuvent pas provenir du spectre $|m_\ell| = 3$, car elles correspondraient alors à des états $\ell \geq 3$ qui ne peuvent pas être peuplés par des transitions dipolaires électriques à partir d'un état P ($\ell = 1$).

Notons que les raies non identifiées sont de faible intensité par rapport aux raies $|m_\ell| = 1$; cette intensité est si faible au voisinage de $E = 0$, que l'on ne peut pas observer les raies parasites.

B 3. BRISURE DE LA SYMETRIE DE REVOLUTION AUTOUR DE LA DIRECTION DU CHAMP ELECTRIQUE F

L'analyse des résultats expérimentaux a montré que $|m_\ell|$ n'était plus un bon nombre quantique et qu'en conséquence la symétrie de révolution autour de la direction du champ électrique n'existait plus.

Nous allons nous attacher à déterminer toutes les causes internes et éventuellement externes de cette brisure de symétrie.

B 3.1. Interaction spin-orbite dans les états excités

Comme tous les spectres enregistrés sont constitués de résonances $|m_\ell|$ et $|m_\ell \pm 1|$, nous avons envisagé la possibilité d'une interaction spin-orbite dans l'état supérieur qui ferait que les atomes soient portés, par l'excitation du deuxième laser, non pas dans des états de $|m_\ell|$ bien défini, mais dans des états de $|m_j|$ bien défini.

Ainsi donc les excitations $\sigma^+\sigma^-$, $\sigma^+\Pi$ et $\sigma^+\sigma^+$ porteraient les atomes respectivement dans les états de $|m_j| = \frac{1}{2}, \frac{3}{2}$ et $\frac{5}{2}$.

Comme à chaque valeur de $|m_j|$ on peut faire correspondre deux valeurs différentes de $|m_\ell|$ ($|m_{\ell\pm}| = |m_j| \pm \frac{1}{2}$), on pourra alors observer, dans le cas d'une interaction spin-orbite assez intense, deux séries de résonances associées respectivement à $|m_{\ell+}|$ et $|m_{\ell-}|$.

Toutefois dans le cas d'un alcalin léger tel que l'atome de sodium, l'interaction spin-orbite est très faible au voisinage de $E = 0$.

Pour évaluer l'importance du mélange entre les états $m_{\ell+}$ et $m_{\ell-}$ induit par l'interaction spin-orbite, nous avons introduit explicitement dans l'hamiltonien décrivant l'effet Stark des états du sodium de moment magnétique total m_j : la partie non coulombienne du potentiel central, l'opérateur Stark, l'interaction spin-orbite et les effets relativistes induits par la présence du champ électrique extérieur [38].

Nous avons construit au voisinage du niveau $n = 15$ la matrice associée à cet hamiltonien sur une base contenant les états nS et nP ($14 \leq n \leq 18$) et les états de moment orbital $\ell \geq 2$ et de nombre quantique principal n' ($13 \leq n' \leq 17$).

Dans le cas des états $|m_j| = \frac{1}{2}$ la dimension d'une telle matrice est de 145 . L'étude des vecteurs propres de cette matrice montre que le mélange entre états $m_\ell = 0$ et $|m_\ell| = 1$ n'excède pas 0,1% en amplitude.

En résumé, on peut dire que l'interaction spin-orbite ne permet pas d'interpréter la double série de résonances observées dans les spectres $\sigma^+\sigma^-$, $\sigma^+\Pi$ et $\sigma^+\sigma^+$.

B 3.2. Perturbation de l'état $3\,^2P_{\frac{3}{2}}$ $F = 3$ $M_F = 3$ due au champ électrique

Lorsque nous avons décrit le principe du pompage optique Zeeman, nous avons supposé que les atomes de sodium n'étaient soumis à aucune perturbation extérieure.

Dans le cas où l'excitation σ^+ se fait en présence d'un champ extérieur, on peut penser que les atomes sont portés, non pas dans un état $|m_\ell| = 1$, mais dans un mélange d'états de $|m_\ell|$ différents.

En effet comme le champ électrique F mélange les niveaux, il apparait alors dans l'état intermédiaire $3\,^2P_{\frac{3}{2}}$ des composantes de parités différentes, principalement des composantes issues du niveau 3D le plus proche (on néglige l'influence de F sur la fonction d'onde de l'état fondamental $3\,^2S_{\frac{1}{2}}$).

Dans de telles conditions le pompage optique hyperfin ne permet plus à l'excitation σ^+ de transférer tous les atomes de sodium dans l'état $|m_\ell| = 1$.

Toutefois l'évaluation de cette perturbation montre qu'elle reste inférieure à 10^{-3} pour un champ $F = 9950$ V/cm .

$$\left(\left| \frac{\langle 3p \,|Fz|\, 3d \rangle}{E(3p) - E(3d)} \right| \sim 10^{-4} \right)$$

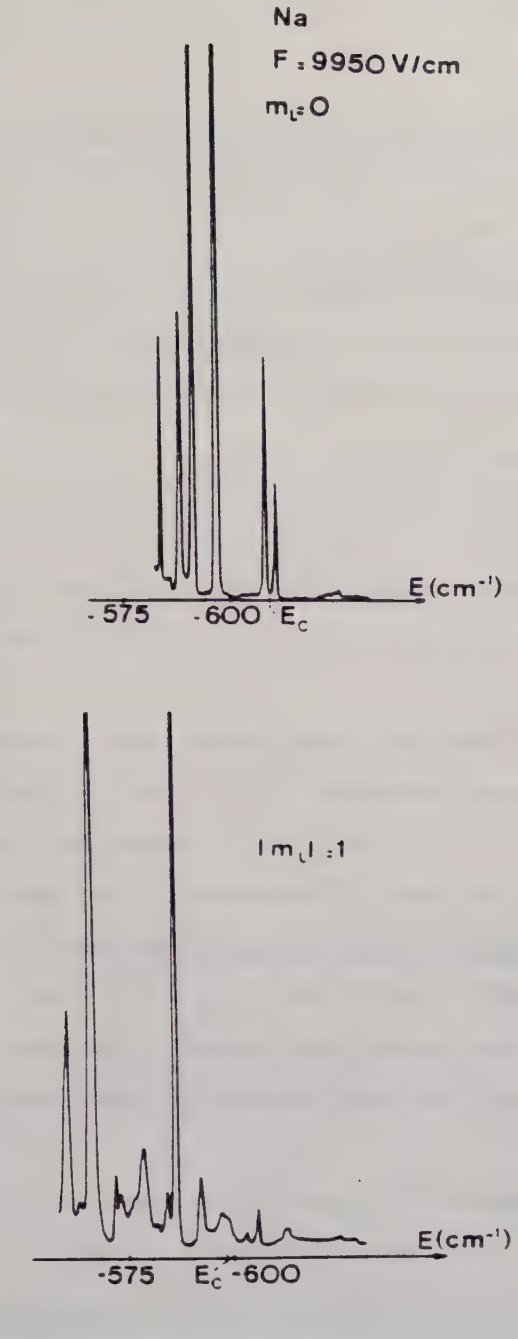


FIGURE IV-8

Dépendance en $|m_\ell|$ de l'énergie critique d'ionisation.

On peut donc considérer que la présence du champ électrique ne modifie en rien le processus de pompage optique.

Néanmoins, si le champ F ne mélange pratiquement pas les niveaux $3P$ et $3D$, il peut par contre mélanger, par l'intermédiaire de la partie tensorielle H_{ten} de l'hamiltonien Stark, les différents sous niveaux hyperfins appartenant au niveau $3\,^2P_{\frac{3}{2}}$ [86].

En fait ce mélange, dont l'élément de matrice

$$\langle I\ J\ F\ M_F \mid H_{ten} \mid I\ J\ F'\ M_F \rangle$$

donne un ordre de grandeur, est nul dans notre cas, parce que la valeur $M_F = 3$ est la valeur extrême du sous niveau $F = 3$.

En résumé on peut dire que le champ électrique F ne perturbe pas l'état du niveau intermédiaire. Toutefois, afin de nous assurer de la bonne définition du nombre quantique $|m_\ell| = 1$ de l'état intermédiaire et de la polarisation du laser pulsé, nous avons réalisé une expérience de mesure d'énergies critiques d'ionisation.

Dans une telle expérience l'énergie critique E_c dépend de la valeur de $|m_\ell|$ de l'état final et non de la valeur du $|\Delta m_\ell|$ de la transition. En effet nous avons trouvé trois seuils d'ionisation distincts pour les trois types d'excitation $\sigma^+\sigma^-$, $\sigma^+\Pi$ et $\sigma^+\sigma^+$ (figure IV 8); ces trois seuils sont séparés par une plage d'énergie de $22\ cm^{-1}$ pour un champ de $9950\ V/cm$, ce qui est en bon accord avec la formule de Cooke et Gallagher [61].

Ces résultats expérimentaux permettent de penser que l'on a un pompage optique efficace et un faisceau ionisant de polarisation bien définie.

Comment expliquer alors que $|m_\ell|$ soit un bon nombre quantique près de $E = E_c$ (trois seuils d'ionisation distincts) et qu'il ne le

soit plus près de $E = 0$ (apparition de raies parasites dans les spectres de photoionisation) ? Pour trouver une réponse à cette question, il faut examiner les perturbations d'origine externe au système atomique, puisque ni l'interaction spin-orbite, ni le champ électrique F ne sont responsables, comme on vient de le voir, de la brisure de symétrie de révolution.

De plus cette perturbation devra être peu importante quand l'atome est dans un état peu excité ($E \simeq E_c$) puisque nous n'avons remarqué aucune anomalie dans cette zone, et être relativement intense lorsque l'atome est dans un état très excité ($E \simeq 0$) .

Parmi les causes d'origine externe pouvant rompre la symétrie de révolution, nous avons retenu le champ magnétique terrestre existant au niveau de la zone d'interaction.

B 3.3. Influence du champ magnétique terrestre

Pour un atome à un électron optique soumis à un champ magnétique extérieur $\vec{B}$, l'hamiltonien perturbateur peut s'écrire sous la forme :

$$H = \mu_B \left(\vec{\ell} + 2\vec{s} \right) \vec{B} + \frac{e^2}{8m^2c^2} \left(\vec{B} \wedge \vec{r} \right)^2$$

où les deux termes correspondent respectivement aux interactions paramagnétique et diamagnétique. Pour les états peu excités, le terme diamagnétique est négligeable. Le terme prédominant est l'hamiltonien Zeeman, linéaire en $\vec{B}$ et petit par rapport à l'interaction coulombienne présente dans le système atomique.

Suivant l'intensité de $\vec{B}$ par rapport à l'interaction spin-orbite on est en présence d'un régime Zeeman, intermédiaire ou Paschen-Back, dont l'analyse est bien connue.

L'hamiltonien diamagnétique dépend du degré d'excitation de l'électron optique, et son intensité est de l'ordre de $\frac{e^2B^2}{8m} n^4 a_o^2$. Il sera

donc prédominant par rapport à l'hamiltonien Zeeman lorsqu'on étudie des états fortement excités. Le terme diamagnétique est indépendant du spin et ne peut pas mélanger des états de nombre quantique m_s différents. En revanche si la direction du champ magnétique diffère de celle de l'axe de quantification, l'hamiltonien diamagnétique peut mélanger des états dont les nombres quantiques m_ℓ diffèrent au plus de deux unités.

Compte tenu de ces considérations, nous analyserons successivement les perturbations dues au champ magnétique terrestre sur l'état intermédiaire $3\ ^2P_{\frac{3}{2}}$ et sur les états excités.

a) Effet paramagnétique sur l'état $3\ ^2P_{\frac{3}{2}}$ $F = M_F = 3$

Les expériences de photoionisation en champ électrique nul ou continu permettent de penser que tous les atomes de sodium ont été préparés dans le sous niveau $3\ ^2P_{\frac{3}{2}}$ $F = 3$ $M_F = 3$.

Toutefois comme la direction du champ magnétique terrestre n'est pas parallèle à celle du champ électrique choisie comme axe de quantification, on peut penser que la sélection de la valeur $M_F = 3$ a été partiellement détruite.

En effet, sous l'action du champ magnétique résiduel d'intensité moyenne $B = 0{,}8$ gauss, les moments magnétiques, orientés initialement dans la direction Oz du champ électrique, vont précesser avec une vitesse angulaire :

$$\omega_L = g_F \cdot 2\Pi\nu_L \cdot B = 4{,}7 \times 10^6 \text{ rd/s} \qquad (\nu_L = 1{,}4 \text{ MHz/gauss})$$

Ainsi donc l'excitation continue σ^+ porterait les atomes non pas dans l'état pur $|\ F = 3\ \ M_F = 3\ \rangle$, mais dans une superposition d'états $|\ F = 3\ \ M_F\ \rangle$ avec M_F variant de $-F$ à F :

$$|\ \Psi\ \rangle = \sum_{M_F=-3}^{+3} A_{M_F}\ |F=3\ ,\ M_F\rangle$$

Comme $|\, m_\ell \,|$ n'est plus un bon nombre quantique ($|\, m_\ell \,|$ est égal à 0 ou 1 dans les sous niveaux $F = 3$ $M_F \neq 3$) , le faisceau laser ionisant de polarisation bien déterminée (σ^+, Π ou σ^-) portera les atomes dans un état caractérisé par plusieurs valeurs de $|\, m_\ell \,|$, ce qui pourrait expliquer l'origine de la série de raies non identifiées.

Toutefois un calcul quantique permet de voir que la variation de la population du niveau $|\, F = 3 \;\; M_F = 3 \,\rangle$ au cours de la durée de vie $\tau = 16 \times 10^{-9}$s est à peine de l'ordre de 1% (voir la fin de chapitre pour le calcul détaillé [87]).

Comme on s'y attendait, le champ magnétique terrestre ne détruit pas l'état $|\, F = 3 \;\; M_F = 3 \,\rangle$ dans lequel ont été préparés les atomes de sodium.

b) <u>Mise en évidence expérimentale de l'influence du champ magnétique terrestre sur les états excités</u>

L'influence du champ magnétique sur l'état final de l'atome étant assez difficile à évaluer, nous avons alors décidé de reprendre toutes les expériences de photoionisation, mais en ayant bien pris soin d'annuler le champ magnétique résiduel.

Une paire de bobines d'Helmholtz (non représentées sur la figure IV 5) permet de compenser le champ magnétique résiduel ; à l'aide d'un gaussmètre à effet Hall (Bell 640) muni d'une sonde adaptée aux champs faibles, on a pu mesurer, sur l'ensemble du volume d'interaction, un champ magnétique résiduel inférieur à 20 milligauss.

Afin de mettre en évidence une éventuelle influence du champ magnétique terrestre, tous les spectres de photoionisation de la figure IV 7 ont été repris dans les mêmes conditions expérimentales.

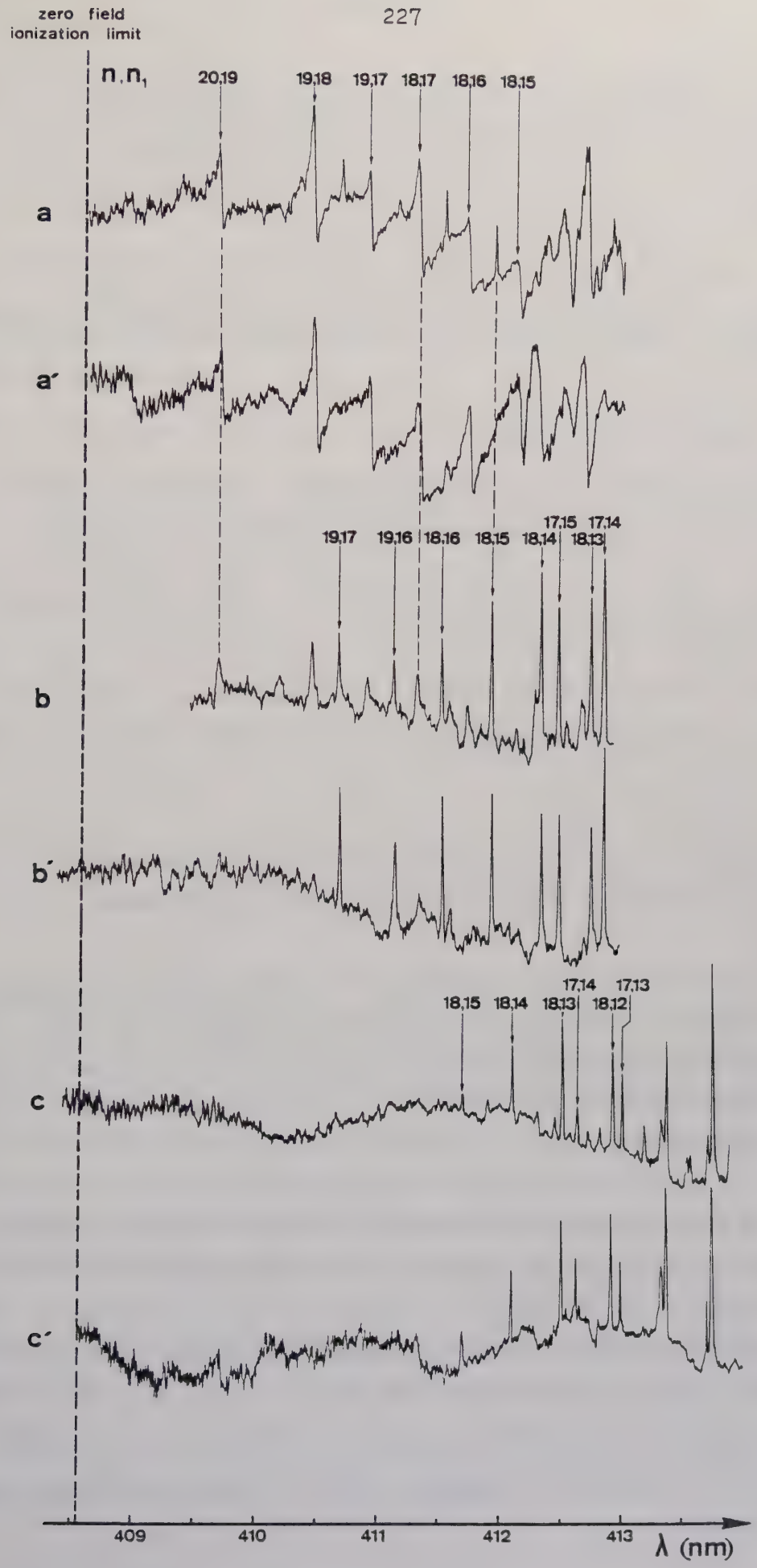
La figure IV 9 permet de comparer, pour chaque type d'excitation,

FIGURE IV-9

Spectres de photoionisation de l'atome de sodium (F = 9950 V/cm) pour différentes polarisations du rayonnement photoionisant .

a) σ^- b) Π c) σ^+ en présence du champ magnétique terrestre.

a') σ^- b') Π c') σ^+ en l'absence du champ magnétique terrestre.


zero field
ionization limit
n,n1
20,19
19,18
19,17
18,17
18,16
18,15
a
a'
19,17
19,16
18,16
18,15
18,14
17,15
17,14
18,13
b
b'
18,15
18,14
18,13
17,14
17,13
18,12
c
c'
409
410
411
412
413
λ (nm)

les spectres obtenus en l'absence du champ magnétique (a', b', c') à ceux obtenus en présence du champ magnétique terrestre (a, b, c) [66] .

On peut ainsi voir que toutes les résonances non identifiées, dans le modèle hydrogénoïde, ont totalement disparu des spectres de photoionisation.

En particulier, le spectre $\sigma^+\sigma^-$ ($m_\ell = 0$) ne contient plus que des raies à profil fortement dissymétrique, alors que le spectre $\sigma^+\Pi$ ($|m_\ell| = 1$) ne contient plus que des résonances étroites.

En résumé c'est le champ magnétique terrestre (ou le champ magnétique résiduel), non parallèle à l'axe de quantification, qui est responsable de la brisure de la symétrie de révolution du système dans l'état final, c'est à dire du mélange des nombres quantiques $|m_\ell|$ dans l'état final.

De tels résultats expérimentaux sont assez surprenants compte tenu de la très faible intensité du champ magnétique terrestre.

Toutefois si l'on s'intéresse à des états atomiques très excités placés dans un champ magnétique, la partie diamagnétique $B^2 r_\perp^2$ de l'interaction magnétique devient importante au voisinage de $E = 0$ (r devient très grand quand $E \to 0$) et peut ainsi rompre la symétrie propre du système.

En effet comme cette interaction diamagnétique est une interaction à très longue portée, on s'attend à ce qu'elle induise essentiellement un couplage entre les états non liés des divers continuums. En effet une évaluation quantitative de ce couplage diamagnétique entre un état quasi stable $|m_\ell| = 1$, situé près de $E = 0$, et les états du continuum $m_\ell = 0$ montre que le niveau $|m_\ell| = 1$ acquiert un élargissement supplémentaire à peine de l'ordre de $10^{-4} cm^{-1}$, ce qui est complètement négligeable.

En conclusion l'intérêt de cette expérience est de montrer que des perturbations très faibles peuvent induire des modifications très sensibles dans les spectres de photoionisation en présence d'un champ électrique pourvu qu'elles rompent la symétrie de révolution du système.

B 4. SPECTRES DE PHOTOIONISATION DANS LE DOMAINE DES ENERGIES POSITIVES PROCHES DE $E = 0$

Ainsi que nous l'avons vu en début de chapitre, les oscillations observées dans le spectre de photoionisation d'un état S ($\ell = 0$) pouvaient être interprétées aussi bien par le modèle de la densité d'états du continuum que par le modèle de la densité de forces d'oscillateurs.

Afin de trancher entre ces deux interprétations possibles de l'origine des oscillations, des expériences de photoionisation ont été réalisées dans d'autres laboratoires sur des atomes portés dans des états excités nL ($\ell \neq 0$) , et plus particulièrement sur l'atome de sodium dans l'état $3\,^2P_{\frac{3}{2}}$ [80,81] .

Malheureusement dans ces deux expériences, comme nous l'avons déjà signalé au début de ce chapitre, le nombre quantique $|\,m_\ell\,|$ de l'état intermédiaire $3\,^2P_{\frac{3}{2}}$ n'est pas défini puisque le premier étage utilise un laser pulsé. Les spectres de photoionisation ainsi enregistrés correspondent donc à la photoionisation simultanée des trois états $m_\ell = 0 , \pm 1$, si bien que l'on ne pouvait pas conclure quant à la validité respective de chacun des deux modèles.

Nous avons donc repris l'expérience, mais cette fois nous partons de l'état $3\,^2P_{\frac{3}{2}}$ $m_\ell = +1$ qui est symétrique par rapport au plan $z = 0$ ($\ell + |m_\ell|$ est pair). Par un choix convenable de la polarisation de la deuxième excitation, nous pouvons :

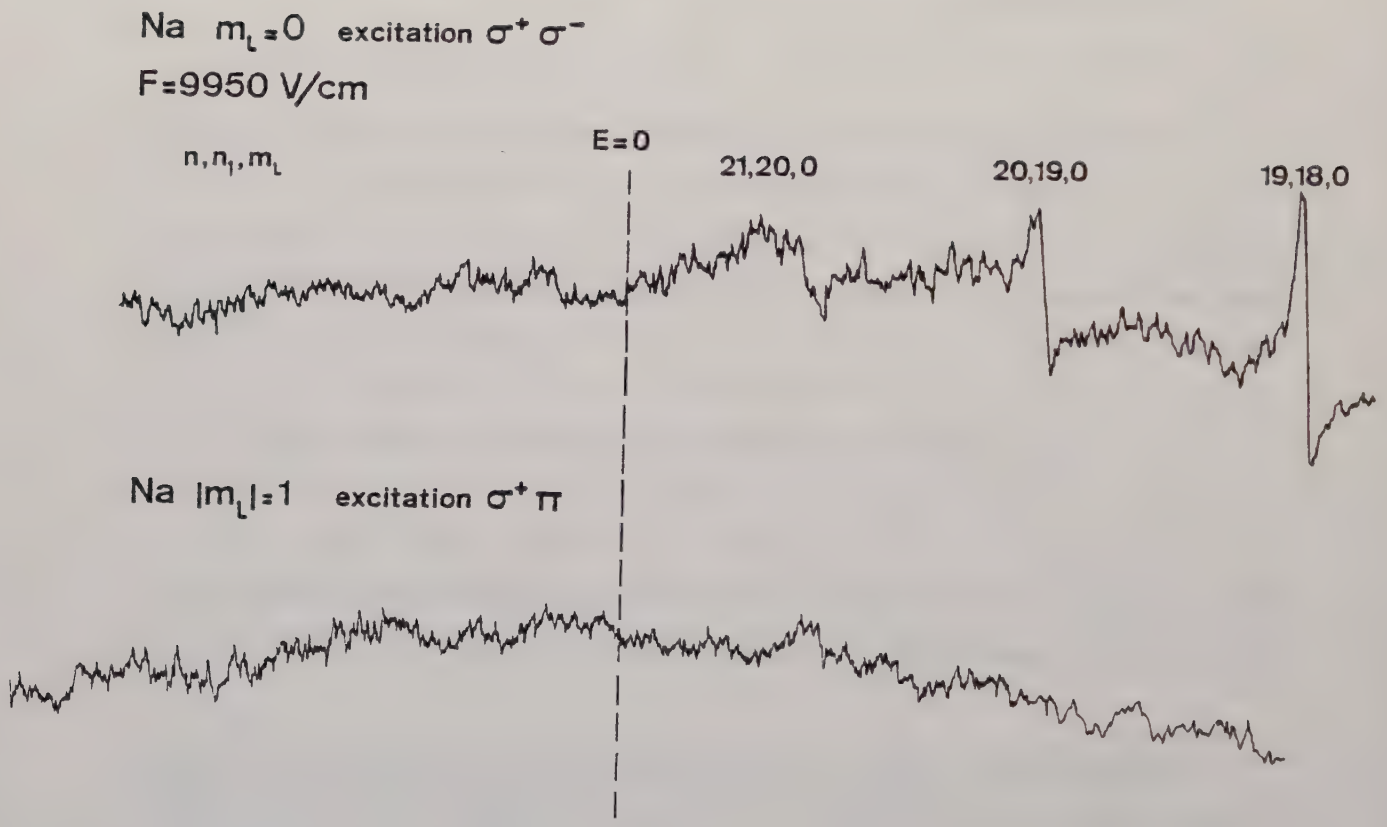


FIGURE IV-10

Comparaison des spectres de photoionisation de l'atome de sodium obtenus en excitation $\sigma^+\sigma^-$ et $\sigma^+\Pi$ (F = 9950 V/cm).

- soit porter l'atome dans un état $m_\ell = 0$ par l'intermédiaire de l'excitation σ^- (spectre $\sigma^+\sigma^-$) . D'après les prédictions du modèle de la densité d'états, nous devrions observer des oscillations au-delà de $E = 0$, puisque nous peuplons des états $m_\ell = 0$; en revanche le modèle de la densité de forces d'oscillateurs ne prévoit aucune oscillation puisque nous utilisons une polarisation Π .

- soit porter l'atome dans un état $|m_\ell| = 1$ par l'intermédiaire de l'excitation Π (spectre $\sigma^+\Pi$) . D'après le modèle de la densité d'états, le spectre ne devrait présenter aucune oscillation (les états $m_\ell = 0$ ne sont pas peuplés) alors que le modèle des forces d'oscillateurs prévoit des oscillations (état intermédiaire $\ell + |m_\ell|$ pair, polarisation Π) .

En conséquence nous pouvons sans ambiguité juger de la validité de chacun des deux modèles en examinant les résultats obtenus dans notre expérience.

La simple comparaison des spectres $\sigma^+\sigma^+$ et $\sigma^+\Pi$ (voir figure IV 10) enregistrés dans un champ $F = 9950$ V/cm , montre clairement que les oscillations n'apparaissent que lors de l'excitation des états $m_\ell = 0$ du continuum. En fait ces oscillations, dont le taux de modulation diminue rapidement à mesure que l'on s'éloigne de $E = 0$ (près de $E = 0$ le taux de modulation est de l'ordre de 6%), ne sont rien d'autre que la suite continue de la structure de raies dissymétriques observées déjà dans le domaine des énergies négatives ($E < 0$) .

La période de ces oscillations est en parfait accord avec l'expression analytique donnée dans le cas des champs intenses ($\frac{dE}{dn} = 0{,}042\ F^{3/4}$ [82]). On obtient ainsi pour des champs de 9950 V/cm et de 5075 V/cm des résonances espacées respectivement de 42 cm^{-1} et de 25 cm^{-1} (voir figure IV 11 a).

Nous avons également étudié le spectre de photoionisation en présence

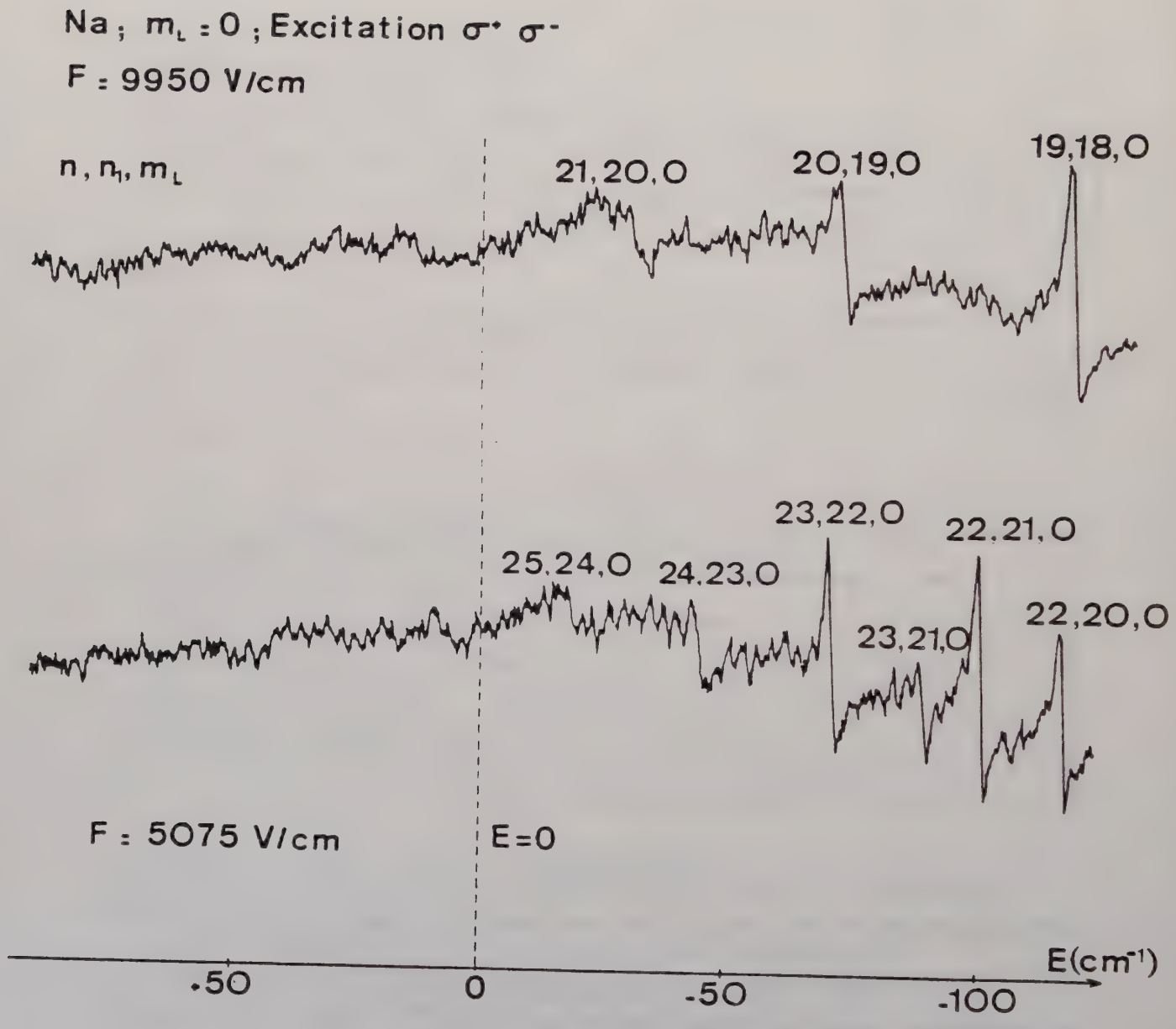


FIGURE IV-11-a

Spectres de photoionisation de l'atome de sodium en excitation $\sigma^+\sigma^-$ pour deux valeurs différentes du champ électrique appliqué.

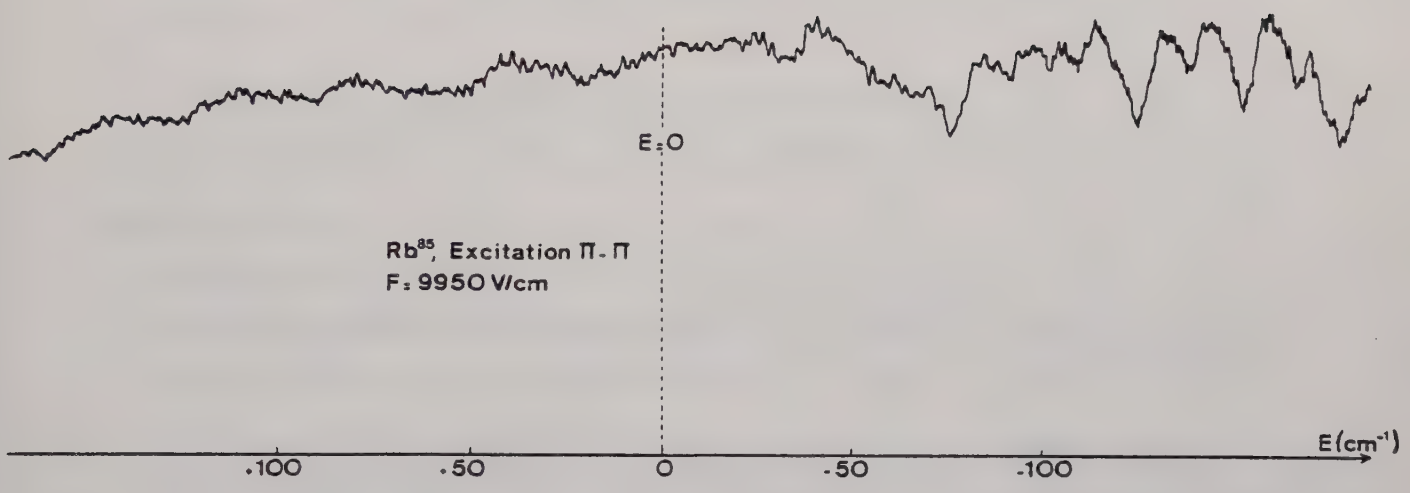


FIGURE IV-11-b

Spectre de photoionisation de l'atome de rubidium (^{85}Rb) en excitation $\Pi - \Pi$.

d'un champ de 9950 V/cm de l'état $5\ ^2P_{\frac{3}{2}}$ $F = M_F = 4$ de l'isotope de masse 85 de l'atome de rubidium.

Nous reviendrons dans le paragraphe suivant sur les résultats obtenus dans le domaine des énergies négatives.

Le spectre Π-Π obtenu pour une polarisation Π des deux rayonnements (excitateur et photoionisant) est présenté dans la figure IV 11b. Ce spectre présente des oscillations s'étendant dans le domaine des énergies positives avec un taux de modulation de l'ordre de 8% et une période en parfait accord avec la formule générale [82].

Comme nous le verrons plus tard, la configuration Π-Π permet d'exciter des états du continuum $m_j = +\frac{1}{2}$ associés aux deux séries de raies ($m_\ell = 0$, $m_s = \frac{1}{2}$) et ($m_\ell = 1$, $m_s = -\frac{1}{2}$) . Les oscillations ont un taux de modulation un peu plus élevé que dans le cas du sodium, car nous avons pu atteindre des états $m_\ell = 0$ avec une polarisation Π (transition $m_\ell = 0 \rightarrow m_\ell = 0$).

Le fait que ces modulations de la section efficace de photoionisation n'apparaissent pas subitement à $E = 0$, comme cela semblait être le cas dans les expériences faites sur le rubidium [62], montre bien que la limite d'ionisation en champ nul $E = 0$ ne joue aucun rôle particulier ; le seul phénomène particulier dans ce domaine d'énergie ($E \sim 0$) est que l'énergie de liaison de l'électron est du même ordre de grandeur que l'énergie d'interaction avec le champ électrique extérieur.

Aucune structure n'apparaît nettement dans le spectre $\sigma^+\Pi$ pour lequel les conditions d'observation d'oscillations déduites du modèle de la densité de forces d'oscillateurs sont satisfaites ($\ell + |m_\ell|$ paire et excitation Π), à moins qu'elle ne soit noyée dans le fond de photoionisation en raison d'un faible taux de modulation.

En résumé, il semblerait que les oscillations observées trouvent leur origine dans le fait qu'on excite les états $m_\ell = 0$ du continuum.

Néanmoins on peut remarquer que les oscillations du spectre $\sigma^+\sigma^-$ ont un taux de modulation assez faible : il est à peine de 6% pour un champ $F = 9950$ V/cm , alors qu'il est de 13% pour un champ $F = 8910$ V/cm dans le spectre Π-Π de la référence [81] .

Or le contraste des oscillations dépend de façon cruciale du recouvrement entre la fonction d'onde $|\Psi_i\rangle$ de l'état initial et la fonction d'onde $|\Psi_f\rangle$ de l'état final. Ce recouvrement est d'autant plus grand que la fonction d'onde $|\Psi_i\rangle$ contient des composantes $m_\ell = 0$.

Dans notre expérience (spectre $\sigma^+\sigma^-$) le taux de modulation est faible, parce que la fonction d'onde de l'état initial ne contient pas de composante $m_\ell = 0$.

Dans le cas de l'excitation Π-Π , on obtient un taux de modulation plus important, car la fonction d'onde :

$$\left|\frac{3}{2}, \pm\frac{1}{2}\right\rangle \quad \left(\left|\frac{3}{2}, \pm\frac{1}{2}\right\rangle = \sqrt{\frac{2}{3}}\,|1,0\rangle\left|\frac{1}{2}, \pm\frac{1}{2}\right\rangle + \sqrt{\frac{1}{3}}\,|1,\pm1\rangle\left|\frac{1}{2}, \mp\frac{1}{2}\right\rangle\right)$$

contient une composante $m_\ell = 0$.

Pour justifier le modèle de la densité d'états [62, 67] , nous avons signalé que les orbites les plus stables au voisinage de $E = 0$ étaient des orbites très allongées sur l'axe Oz , défini par la position du noyau et le champ électrique extérieur, et pointant dans la direction de la cathode. De tels états, qui sont du type $m_\ell = 0$, peuvent être associés à de grandes probabilités d'excitation à partir d'états $m_\ell = 0$, puisque le recouvrement de l'état excité Ψ_f de l'opérateur transition z et de l'état initial Ψ_i est alors très important.

L'importance des phénomènes d'annulation dans le calcul de l'élément de matrice de l'opérateur transition $\langle \Psi_i |z| \Psi_f (E) \rangle$ varie fortement avec l'énergie E de l'état excité, puisque un nouveau noeud apparait sur l'axe Oz chaque fois que n_1 augmente d'une unité. Ceci explique l'existence de minimums et de maximums prononcés dans la dépendance de $\langle \Psi_i |z| \Psi_f (E) \rangle$ en fonction de E [80].

Ces considérations permettent de comprendre pourquoi on observe des oscillations ayant un taux de modulation élevé, quand on excite les états $m_\ell = 0$ du continuum en partant d'un état $| \ell \; m_\ell = 0 \rangle$ [80, 81].

Ainsi les prédictions du modèle des densités d'états ne sont pas suffisantes ; il faut que le nombre quantique magnétique $| m_\ell |$ de l'état photoionisé soit nul (ou, ce qui est équivalent, il faut que la polarisation du rayonnement photoionisant soit du type Π dans le cas où l'état initial contient une composante $m_\ell = 0$).

Remarquons que mis à part le cas déjà étudié de la photoionisation de l'état $5\,^2S_{\frac{1}{2}}$ de l'atome de rubidium, il n'est pas possible expérimentalement de peupler dans le cas d'un alcalin des états excités de moment angulaire ℓ non nul, de valeur $| m_\ell |$ parfaitement définie et inférieure à ℓ en module. On ne peut donc pas étudier sans ambiguité les transitions $m_\ell = 0 \rightarrow m_\ell = 0$ dans le cas des atomes alcalins.

En revanche, une telle expérience peut être réalisée dans le cas d'un atome à deux électrons optiques (alcalino-terreux ou Ytterbium par exemple). C'est ainsi qu'on a pu observer des oscillations au voisinage de $E = 0$ dans le spectre de photoionisation en présence d'un champ électrique du niveau $6s\,6p\,^1P_1$ du baryum en utilisant des excitations Π-Π [81].

Ayant précisé la limite de validité des prédictions fournies par le modèle de la densité d'états, on peut maintenant s'interroger sur les limites du modèle de la densité de forces d'oscillateurs. Rappelons

que les résultats de ce modèle ont été obtenus dans l'étude de la photoionisation en présence d'un champ électrique des états ^2S des atomes alcalins.

Le modèle des densités de forces d'oscillateurs conduit à étudier séparément la dépendance en énergie des densités partielles de forces d'oscillateurs $\frac{df}{dE}(|m_\ell|, n_1, E)$ pour chacune des transitions vers les états du continuum de nombres quantiques $|m_\ell|$ et n_1 fixés.

Compte tenu des propriétés de symétrie par rapport au plan $z = 0$ des fonctions d'ondes de l'état initial, de la polarisation de la lumière excitatrice et de la fonction d'onde de l'état final $\Psi(|m_\ell|, n_1, E_s)$ pour la valeur particulière de l'énergie E_s (telle que $Z_1 \simeq Z_2$ et $E_s \sim \frac{(E_c + E_d)}{2}$ où E_c et E_d sont les deux limites du continuum étudié [15, 16]), on peut prévoir l'existence soit d'interférences constructives, soit d'interférences destructives dans le calcul de la densité partielle de forces d'oscillateurs.

De telles interférences sont associées respectivement soit à un maximum local, soit à une annulation dans la courbe donnant la variation de la quantité $\frac{df}{dE}$ en fonction de E. La présence d'annulations dans la densité partielle de forces d'oscillateurs peut avoir pour conséquence l'apparition d'oscillations dans la densité totale de forces d'oscillateurs.

Les résultats obtenus dans l'étude des états ^2S ont ensuite été généralisés au cas des états ^2L ($L \neq 0$) .

La photoionisation des états ^2S est un cas particulier dans la mesure où elle ne fait intervenir, si on analyse le problème en coordonnées sphériques, que la voie de photoionisation vers le continuum P .

En revanche, si on photoionise un état de moment angulaire non nul ℓ , on met en jeu les continuums $(\ell + 1)$ et $(\ell - 1)$, à condition bien sûr que la nature de la polarisation du rayonnement photoionisant soit telle que le continuum $(\ell - 1)$ puisse intervenir (il faut que le moment magnétique $|m_\ell|$ de l'état final vérifie la relation $|m_\ell| \leq \ell - 1$). Cette condition est vérifiée pour des polarisations σ^+ ou Π du rayonnement de photoionisation, pourvu que le nombre quantique magnétique de l'état initial soit tel que $|m_\ell| \leq \ell - 2$ ou $|m_\ell| \leq \ell - 1$.

Dans le cas où deux continuums interviennent, il peut apparaître des phénomènes d'interférence entre ces deux voies d'ionisation, ce qui se traduit par l'apparition d'annulations supplémentaires dans la densité partielle de forces d'oscillateurs $\frac{df}{dE}(|m_\ell|, n_1, E)$.

On peut remarquer que si $\frac{df}{dE}(|m_\ell|, n_1, E)$ s'annule pour des valeurs $E = E_a$ et $Z_1 = Z_1^a$ de l'énergie et de la constante de séparation Z_1 , il existe alors une deuxième valeur de l'énergie $E = E_b$, définie par la condition $Z_1^b = Z_1 - Z_1^a$, pour laquelle la quantité $\frac{df}{dE}(|m_\ell|, n_1, E)$ s'annule de nouveau.

Ce résultat découle des propriétés de symétrie, par rapport au plan $z = 0$, qui relient les fonctions d'ondes $\Psi(|m_\ell|, n_1, E_a)$ et $\Psi(|m_\ell|, n_1, E_b)$.

En effet pour une valeur $E = E_a$ les constantes de séparation Z_1 et Z_2 des mouvements suivant les coordonnés ξ et η sont égales à Z_1^a et $Z - Z_1^a$; si on s'intéresse à une autre valeur de l'énergie $E = E_b$ telle que $Z_1 = Z_1^b = Z - Z_1^a$, la constante de séparation du mouvement suivant η est égale à $Z_2 = Z_1^a$.

Ainsi donc pour la valeur $E = E_a$ et au voisinage du noyau (les termes $F\eta$ et $F\xi$ sont alors négligeables) le mouvement suivant ξ est équivalent au mouvement suivant η pour la valeur $E = E_b$ (même remarque pour le mouvement suivant ξ pour $E = E_b$ et le mouvement suivant η pour $E = E_a$).

Compte-tenu de ces propriétés de symétrie, on peut écrire :

$$\Psi_{E=E_a}(z, \rho, \varphi) = \Psi_{E=E_b}(-z, \rho, \varphi)$$

On comprend alors que si la quantité $\frac{df}{dE}$ s'annule pour $E = E_a$, elle s'annule aussi pour $E = E_b$ ($|\langle\Psi_i|z|\Psi_a\rangle| = |\langle\Psi_i|z|\Psi_b\rangle|$) .

Il est alors nécessaire d'étudier la possibilité d'interférence entre les deux voies d'ionisation avant de conclure à l'existence ou non d'oscillations. L'existence d'annulations, pour des valeurs de E différentes de E_s , dans la courbe $\frac{df}{dE}$ a été mise en évidence dans le calcul de la section efficace de photoionisation des états $|\, 3P, m_\ell=0 \,\rangle$ et $|\, 3P, |m_\ell|=1 \,\rangle$ de l'hydrogène soumis à un champ électrique de 77 kV/cm - [88] .

Ces annulations apparaissent uniquement quand le continuum S peut être atteint, ce qui est réalisé avec des excitations du type $\sigma^{\pm}$, $\sigma^{\mp}$ et Π-Π .

Les mêmes calculs montrent que la quantité $\frac{df}{dE}$ présente pour $E = E_s$ soit un maximum local, soit une annulation qui est due à des propriétés particulières de symétrie.

En résumé, pour pouvoir justifier de l'existence ou non d'oscillations dans la section efficace de photoionisation en présence d'un champ électrique au voisinage de la limite d'ionisation en champ nul, il faut

étudier plusieurs points :

- la possibilité d'interférences destructives entre les continuums ($\ell - 1$) et ($\ell + 1$) , ce qui représente une source d'oscillations dont le taux de modulation est moyen (11% pour l'atome d'hydrogène dans un champ $F = 77$ kV/cm [88]).

- l'existence d'une annulation à $E \sim E_s$ due à des propriétés de symétrie par rapport au plan $z = 0$, ce qui est aussi une source d'oscillations dont le taux de modulation est assez faible (3% pour $F = 77$ kV/cm).

- la possibilité de peupler les états $m_\ell = 0$ du continuum ; ces états sont très stables et correspondent à des maximums très importants dans la probabilité de présence de l'électron près du noyau.

Comme la densité partielle des états du continuum $C_{n_1}^{m_\ell=0}(E)$ présente une forte discontinuité à l'énergie critique parabolique $E = E_c^p (n_1, |m_\ell|=0)$ (figure I 10) (la discontinuité de la fonction $C_{n_1}^{|m_\ell|=1}(E)$ est beaucoup moins prononcée à $E = E_c^p (n_1, |m_\ell|=1)$, la densité partielle de forces d'oscillateurs subit une forte variation à $E = E_c(|m_\ell|=0)$, ce qui se traduit par l'apparition d'une résonance très fine dans le spectre de photoionisation (on aurait eu une résonance très large, c'est à dire non observable, dans un spectre $| m_\ell | = 1$).

Si de plus l'état $m_\ell = 0$ est peuplé par une excitation Π , on observe des taux de modulation élevés, compte-tenu des considérations semi-classiques (43% pour $F = 77$ kV/cm).

Ces trois points différents permettent de comprendre les résultats obtenus dans l'étude de la photoionisation de l'état 3P de l'atome d'hydrogène. L'analyse de ces résultats est présentée dans le tableau II.

$\|m_\ell\|$ de l'état initial (ℓ=1)	Symétrie par rapport au plan z=0 de la fonction d'onde de l'état initial	Nature de la polarisation du rayonnement de photoionisation	$\|m_\ell\|$ de l'état final	Causes possibles d'oscillations			
				Symétrie de l'état final	Interférences entre les continuums S et D	m_ℓ=0 de l'état final	Rayonnement photoionisant de polarisation π
0	antisymétrique	σ^+	1	oui			
		π	0		oui	oui	oui
1	symétrique	σ^+	2				
		π	1	oui			
		σ^-	0		oui	oui	

TABLEAU II

Analyse des différentes causes possibles d'oscillations dans les spectres de photoionisation des états 3P $|m_\ell| = 0, 1$ de l'atome d'hydrogène

(oui : cause possible d'oscillations).

En conclusion, on peut dire que la prévision d'oscillations dans la section efficace de photoionisation en présence d'un champ électrique d'un état parfaitement défini par les valeurs de tous ses nombres quantiques et pour une polarisation bien définie, est un problème relativement complexe.

En effet ce phénomène est lié non pas à la structure présentée par la densité d'états, mais à celle existant dans la densité de forces d'oscillateurs. Il s'agit donc d'une grandeur non diagonale pour laquelle seul un calcul numérique permet d'évaluer l'importance des phénomènes d'annulation ainsi que le taux de modulation.

Nous avons cependant pu dégager quelques règles relativement simples permettant d'obtenir à priori quelques informations qualitatives sur l'aspect des spectres de photoionisation en présence d'un champ électrique au voisinage de $E = 0$.

Il faut cependant remarquer que, pour un état de nombres quantiques déterminés et un champ F fixé, le taux de modulation dépend de l'élément considéré ; le calcul doit par conséquent tenir compte du caractère non hydrogénoïde du spectre étudié.

C - SECTION EFFICACE DE PHOTOIONISATION EN PRESENCE D'UN CHAMP ELECTRIQUE DE L'ETAT EXCITE $5\ ^2P_{\frac{3}{2}}$ $F = 4$ $M_F = 4$ DE L'ATOME DE RUBIDIUM (ALCALIN LOURD)

Dans la partie précédente nous nous sommes intéressés au spectre de photoionisation en présence d'un champ électrique de l'état $3\ ^2P_{\frac{3}{2}}$ $F=3$ $M_F=3$ de l'atome de sodium au voisinage de la limite d'ionisation en champ nul.

Dans le cas du sodium, alcalin léger, l'interaction spin-orbite est négligeable si bien que la structure des spectres de photoionisation Stark est essentiellement déterminée par le caractère non coulombien du potentiel central auquel est soumis l'électron optique.

Il n'en est pas de même pour les alcalins lourds, pour lesquels les effets relativistes ne peuvent plus être négligés.

A cette étape de notre travail, il nous a donc semblé particulièrement intéressant de réaliser sur un atome alcalin lourd les mêmes expériences que celles concernant le sodium et décrites dans la partie B, afin de juger de l'importance des phénomènes nouveaux liés à l'interation spin-orbite apparaissant au voisinage de la limite d'ionisation sans champ.

Aussi nous avons étudié le spectre de photoionisation de l'état $5\ ^2P_{\frac{3}{2}}$ $F = 4$ $M_F = 4$ de l'atome de rubidium placé dans un champ électrique, en ayant les mêmes exigences que pour le sodium, tant du point de vue de la pureté de l'état intermédiaire que du choix bien défini de la polarisation des rayonnements excitateur et photoionisant.

Rappelons que l'étude des spectres Stark au voisinage de la limite

d'ionisation classique a déjà mis en évidence l'importance des effets liés à l'interaction spin-orbite dans le cas de l'atome de rubidium.

En effet nous avons attribué à l'interaction spin-orbite deux phénomènes très fins (très bien localisés en énergie et en intensité du champ électrique) observés au voisinage de $E = E_c$: il s'agit d'une part de l'observation d'un profil de Fano très étroit, d'autre part de la stabilisation d'un niveau Stark [65, 69] .

L'étude du sodium nous a également permis de montrer qu'au voisinage de la limite d'ionisation en champ nul, le spectre de photoionisation Stark est particulièrement sensible à toute perturbation brisant la symétrie de révolution du système autour de l'axe Oz défini par la direction du champ électrique, même si cette perturbation est d'une intensité très faible comme celle induite par le champ magnétique terrestre [66] .

Pour toutes ces raisons il était possible de penser que l'étude au voisinage de $E = 0$ du spectre de photoionisation Stark du rubidium nous permettrait de mettre en évidence des phénomènes nouveaux.

Nous allons décrire le dispositif expérimental utilisé, avant de présenter et d'analyser les résultats obtenus.

C 1. DISPOSITIF EXPERIMENTAL. PURETE DE L'ETAT INTERMEDIAIRE

Comme dans le cas du sodium, nous avons utilisé la technique du pompage optique Zeeman pour peupler de façon sélective l'état $5\ ^2P_{\frac{3}{2}}$ $F = 4$ $M_F = 4$ de l'isotope ^{85}Rb .

C 1.1. Pompage optique. Choix des polarisations. Effet isotopique

Le jet atomique de rubidium naturel (composition isotopique : 72% de rubidium de masse 85 et 28% de rubidium de masse 87) est

éclairé transversalement par un rayonnement laser monomode et continu.

Les structures hyperfines des états fondamentaux $5\ ^2S_{\frac{1}{2}}$ des deux isotopes [$\Delta\nu\ (Rb^{85}) = 3035{,}7$ MHz et $\Delta\nu\ (Rb^{87}) = 6834{,}7$ MHz] sont résolues, ce qui permet d'exciter soit l'isotope Rb^{87}, soit l'isotope Rb^{85} qui a été retenu pour l'expérience en raison de son abondance naturelle.

Le rayonnement laser, perpendiculaire au jet atomique, est ainsi accordé sur la raie la plus intense du groupe de raies D_2 de l'isotope 85, c'est à dire plus précisément sur la transition :

$$5\ ^2S_{\frac{1}{2}}\ \ F = 3 \rightarrow 5\ ^2P_{\frac{3}{2}}\ \ F = 4$$

Comme la lumière est polarisée σ^+, toute la population du sous niveau hyperfin $F = 3$ de l'état fondamental $5\ ^2S_{\frac{1}{2}}$ se trouve regroupée dans le sous niveau Zeeman $F = 3\ \ M_F = 3$ de l'état $5\ ^2S_{\frac{1}{2}}$ (pompage optique Zeeman), et par suite seul le sous niveau $F = 4\ \ M_F = 4\ \ m_j = \frac{3}{2}\ \ m_\ell = 1$ de l'état excité $5\ ^2P_{\frac{3}{2}}$ est peuplé.

Le deuxième faisceau laser, délivré par un laser à colorant pulsé pompé par un laser à azote, est colinéaire soit au premier faisceau laser (excitations $\sigma^+\sigma^-$ et $\sigma^+\sigma^+$), soit au jet atomique (excitation $\sigma^+\Pi$). Le deuxième faisceau est totalement inclus dans le premier faisceau, de sorte qu'il interagit avec les atomes déjà préparés dans l'état $5\ ^2P_{\frac{3}{2}}\ \ m_\ell = 1$.

Comme dans les expériences réalisés sur l'atome de sodium, des bobines d'Helmholtz annulent le champ magnétique résiduel subsistant dans la zone d'interaction.

C 1.2. <u>Pureté de l'état intermédiaire</u>

Nous avons vu que la méthode du pompage optique Zeeman permet de

peupler le sous niveau Zeeman hyperfin $5\ ^2P_{\frac{3}{2}}\ F = 4\ M_F = 4$ de l'isotope 85 . Comme le pompage se fait en présence d'un champ électrique extérieur d'intensité $F = 9950$ V/cm , il est nécessaire d'évaluer l'importance de la perturbation de cet état liée au champ électrique.

Tout d'abord, l'effet Stark linéaire peut introduire dans la fonction d'onde du niveau $5\ ^2P_{\frac{3}{2}}$ des composantes de moment orbital et de parité différents, en particulier celles issues des niveaux les plus proches $4\ ^2D_{j=\frac{3}{2},\ \frac{5}{2}}$ et $5\ ^2S_{\frac{1}{2}}$. Une telle perturbation pourrait modifier l'efficacité du pompage optique hyperfin Zeeman.

Cependant les calculs montrent que l'ordre de grandeur du mélange induit dans la fonction d'onde de l'état étudié est négligeable pour un champ $F = 9950$ V/cm ; en effet nous avons :

$$\left| \frac{\langle 5p\ |Fz|\ 4d \rangle}{E(5p) - E(4d)} \right| < 5.10^{-4} \quad \text{et} \quad \left| \frac{\langle 5p\ |Fz|\ 5d \rangle}{E(5p) - E(5s)} \right| < 2.10^{-4}$$

ce qui est totalement négligeable.

L'effet Stark quadratique peut d'autre part mélanger des états hyperfins associés à des valeurs de F différentes. Comme nous nous intéressons à la valeur extrême $F = M_F = 4$, la perturbation associée à la partie tensorielle de l'hamiltonien Stark n'apporte aucune contribution [86] .

La structure hyperfine magnétique (dipolaire magnétique ou quadripolaire électrique qui peut mélanger les états hyperfins de mêmes valeurs de F et M_F appartenant aux niveaux $5\ ^2P_{\frac{1}{2}}$ et $5\ ^2P_{\frac{3}{2}}$ n'apporte aucune contribution, puisque nous étudions la valeur maximale de F .

En conclusion de cette analyse, on peut dire que la méthode du

pompage optique Zeeman permet de porter l'atome de l'isotope ^{85}Rb dans un état $5\ ^2P_{\frac{3}{2}}$ $F = 4$ $M_F = 4$ pur, c'est à dire dans l'état

$5\ ^2P$ $m_s = \frac{1}{2}$ $m_\ell = 1$ $m_j = \frac{3}{2}$ $m_I = \frac{5}{2}$.

C 2. SPECTRES DE PHOTOIONISATION DANS LE DOMAINE DES ENERGIES NEGATIVES PROCHES DE $E = 0$

Les spectres de photoionisation obtenus au voisinage de $E = 0$ ($E < 0$) dans un champ $F = 9950$ V/cm sont représentés sur la figure IV 12. Ils correspondent aux différentes polarisations σ^-, Π ou σ^+ du rayonnement photoionisant, la polarisation du rayonnement excitateur étant toujours du type σ^+ .

C 2.1. Forme des raies

Les structures observées dans les trois spectres $\sigma^+\sigma^-$, $\sigma^+\Pi$ et $\sigma^+\sigma^+$ sont de nature différente. Le spectre $\sigma^+\sigma^-$ est le seul à comporter des raies relativement larges ($\Gamma \sim 20$ à 30 cm^{-1}) au voisinage immédiat de $E = 0$.

Ces structures ont un caractère dissymétrique prononcé, mais ne ressemblent pas aux profils de Fano typiques observés dans le spectre $\sigma^+\sigma^-$ du sodium [66] .

Lorsqu'on s'éloigne de la limite d'ionisation en champ nul $E = 0$, les raies deviennent plus étroites et plus symétriques. Elles peuvent être classées en deux séries alternées selon l'importance de leurs largeurs spectrales, parce qu'il existe une succession de raies larges ($\Gamma \sim 10$ cm^{-1}) et étroites ($\Gamma \sim 2$ cm^{-1}) .

Le spectre $\sigma^+\Pi$ ne comporte pratiquement pas de structure pour des énergies supérieures à -125 cm^{-1} ; il présente en revanche pour

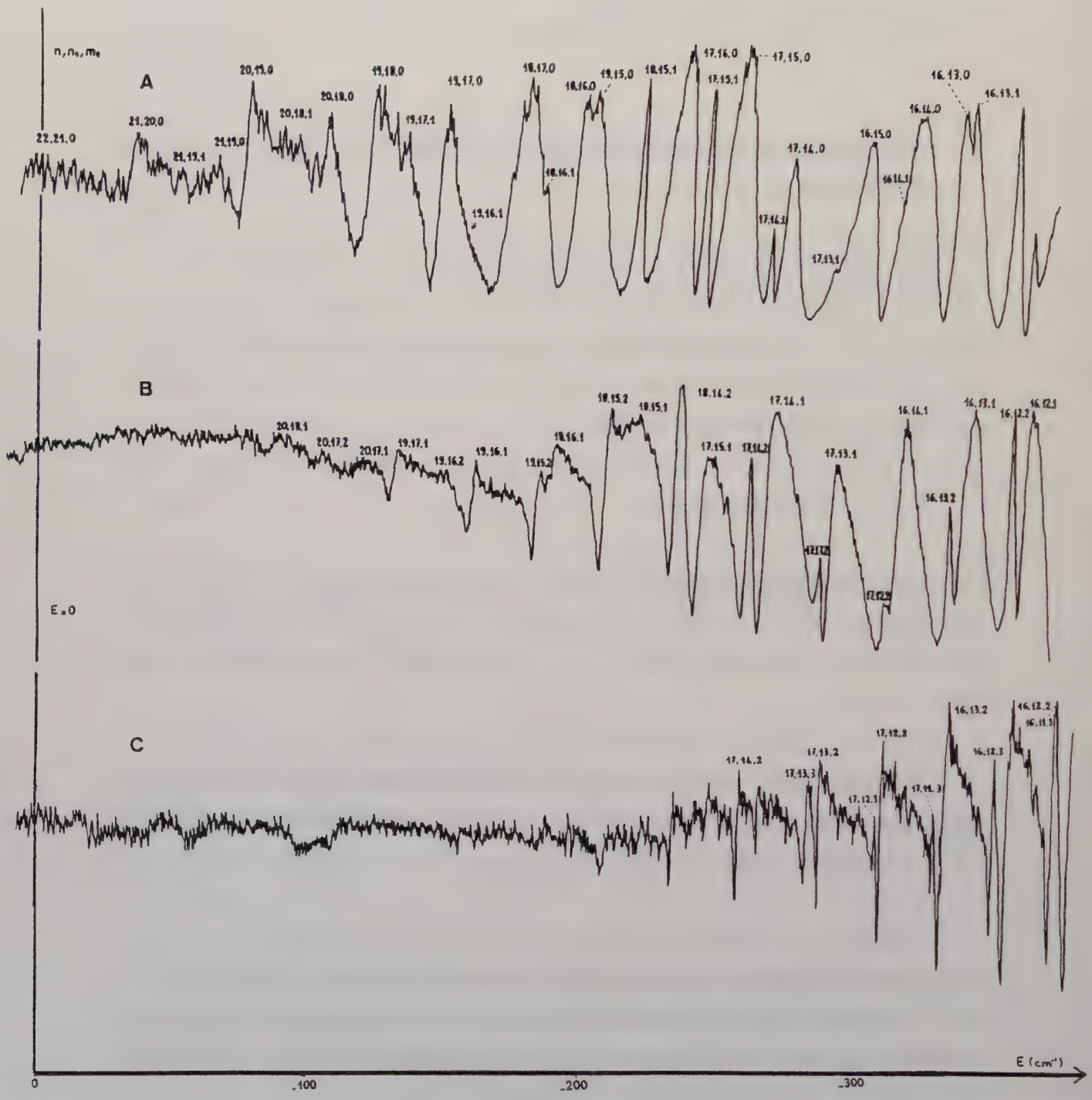


FIGURE IV-12

Spectres de photoionisation de l'atome de rubidium (^{85}Rb)

en excitation $\sigma^+\sigma^-$ (A) , $\sigma^+\Pi$ (B) et $\sigma^+\sigma^+$ (C) .

(F = 9950 V/cm)

des énergies plus faibles, d'abord quelques structures larges à profil irrégulier ($\Gamma \simeq 20\ cm^{-1}$) , puis ensuite deux séries de raies alternées, les unes larges, les autres étroites, et dont les largeurs sont comparables à celles observées dans le spectre $\sigma^+\sigma^-$; les raies larges ont un caractère légèrement dissymétrique alors que les raies étroites ont des profils symétriques.

Enfin le spectre $\sigma^+\sigma^+$ a un aspect très particulier : il n'existe aucune structure sur un grand domaine d'énergie au voisinage de $E = 0$ ($-250\ cm^{-1} < E < 0$) comme cela avait déjà été observé dans le cas du sodium.

A des énergies moins élevées, il présente des structures très étroites ($\Gamma \sim 2\ cm^{-1}$) de caractère dissymétrique très prononcé et ressemblant à des profils de Fano dont le facteur q serait voisin de l'unité. Au centre de ces courbes de "dispersion", on observe des raies pratiquement symétriques et très étroites ($\Gamma \sim 2\ cm^{-1}$) . Enfin les états d'énergie beaucoup plus faible sont associés à des profils symétriques étroits.

Si on superpose les trois spectres, on constate que les structures apparaissent dans tous les spectres approximativement aux mêmes énergies, mais avec des profils et des largeurs très différents.

Ainsi les raies étroites du spectre $\sigma^+\sigma^-$ sont associées aux raies larges du spectre $\sigma^+\Pi$, et réciproquement les raies larges du spectre $\sigma^+\sigma^-$ correspondent aux raies fines du spectre $\sigma^+\Pi$. La même remarque est valable quand on compare les spectres $\sigma^+\Pi$ et $\sigma^+\sigma^+$.

C 2.2. Identification des raies : mise en évidence expérimentale de l'influence de l'interaction spin-orbite sur les états excités

Les structures obtenues dans chacun des trois spectres étudiés $\sigma^+\sigma^-$, $\sigma^+\Pi$ et $\sigma^+\sigma^+$ peuvent être classées en deux groupes distincts selon les profils et les largeurs des raies observées.

De plus, si on compare les structures observées dans le spectre du sodium à celles observées dans le spectre du rubidium (les deux spectres sont obtenus dans le même domaine d'énergie avec les mêmes polarisations du rayonnement photoionisant, la même intensité du champ électrique F et en l'absence du champ magnétique terrestre), on constate alors que le nombre de raies est deux fois plus grand dans le rubidium que dans le sodium.

Comme les structures observées dans les trois spectres du rubidium sont en apparence dégénérées et comme il s'agit d'un alcalin lourd, il est raisonnable de penser que l'interaction spin-orbite n'est pas négligeable.

Dans ces conditions le moment magnétique total $| m_j |$ devient un bon nombre quantique, ce qui permet de caractériser toutes les résonances observées sur les trois spectres.

Ainsi les structures observées dans le spectre $\sigma^+\sigma^-$ correspondent à des états $| m_j | = \frac{1}{2}$, auxquels on peut associer les deux séries d'états : $(m_s = \frac{1}{2}, | m_\ell | = 0)$ et $(m_s = -\frac{1}{2}, m_\ell = 1)$.

De la même manière, le spectre $\sigma^+\Pi$ contient les états $| m_j | = \frac{3}{2}$ auxquels correspondent les séries d'états $(m_s = \frac{1}{2}, | m_\ell | = 1)$ et $(m_s = -\frac{1}{2}, | m_\ell | = 2)$.

Enfin l'excitation $\sigma^+\sigma^+$ permet de peupler les états $| m_j | = \frac{5}{2}$ auxquels correspondent les séries d'états $(m_s = \frac{1}{2}, | m_\ell | = 2)$ et $(m_s = -\frac{1}{2}, | m_\ell | = 3)$.

L'identification des résonances Stark est faite dans l'approximation hydrogénoïde, qui est bien adaptée à l'étude des états très excités $(E \sim 0)$.

Les résultats obtenus dans le cas du sodium sont alors immédiatement

applicables, parce que les deux études faites sur le sodium et le rubidium ont été effectuées pour une même intensité du champ électrique. La figure IV 12 présente la classification retenue pour chacune des résonances.

C 3. ROLE JOUE PAR L'INTERACTION SPIN-ORBITE DANS LES ETATS DE RYDBERG DU RUBIDIUM

C 3.1. Phénomènes liés à l'importance de l'interaction spin-orbite pour les états de Rydberg du rubidium

A première vue, il peut paraître surprenant que l'interaction spin-orbite puisse perturber les états très excités de l'atome de rubidium, puisque l'intensité de cette interaction décroit en $\frac{1}{n^3}$ avec le nombre quantique principal n .

En revanche l'intensité de la perturbation diamagnétique croit en n^4 et peut être particulièrement importante, même pour un champ magnétique faible, si on étudie des états très excités.

Cependant des études expérimentales portant sur l'atome de rubidium non perturbé ont mis en évidence l'importance du rôle joué par les effets relativistes dans les états de Rydberg de cet atome. Tout d'abord la structure fine des termes n^2D et n^2F présente des anomalies que l'on peut attribuer à un effet de second ordre croisé faisant intervenir les effets relativistes et la polarisation du coeur par l'électron de valence.

Ainsi les termes n^2F présentent une structure fine inversée, le niveau $n^2F_{7/2}$ ayant une énergie inférieure à celle du niveau $n^2F_{5/2}$ [89] .

Quant à la structure fine des termes n^2D mesurée pour des états de Rydberg très excités ($n \leq 55$) , elle ne varie pas suivant la

loi $\frac{1}{n^3}$ déduite d'un modèle à un électron [90] .

Un autre phénomène lié à l'importance des effets relativistes concerne les anomalies d'intensité observées sur les raies de résonances $5s - n\,^2P_{\frac{1}{2},\frac{3}{2}}$ ($29 \leq n \leq 50$) . Le rapport d'intensité des deux composantes de ce doublet n'est pas égal à deux, rapport des poids statistiques des deux niveaux excités $n\,^2P_{\frac{3}{2}}$ et $n\,^2P_{\frac{1}{2}}$, mais prend la valeur $5,9 \pm 1,4$ indépendamment de la valeur de n pour les cas étudiés [56] .

En ce qui concerne les forces d'oscillateurs des transitions s'effectuant à partir du niveau $5p$ nous avons vérifié que les forces de raies des transitions $5\,^2P_j - n\,^2S_{\frac{1}{2}}$ et $5\,^2P_j - n\,^2D_{j'}$ ne dépendaient pas de façon significative de la valeur des moments angulaires j et j' (les variations relatives sont inférieures à $0,5\%$ dans le premier cas et 2% dans le second).

Dans les états de Rydberg de l'atome de rubidium perturbé par un champ électrique, l'importance de la perturbation liée à l'interaction spin-orbite ne peut être négligée en régime sous-critique ($E < E_c$) .

Cette perturbation doit être prise en compte, au même titre que le caractère non coulombien du potentiel central, dans le calcul de la structure Stark.

Cependant l'importance relative de ces deux perturbations varie suivant la valeur de $|\, m_j \,|$ des états étudiés.

Ainsi pour les états $|\, m_j \,| = \frac{5}{2}$, on distingue en champ fort deux multiplicités distinctes associées respectivement aux états $|\, m_\ell \,| = 3$ et $|\, m_\ell \,| = 2$, la première étant de caractère essentiellement hydrogénoïde (les états $|\, m_\ell \,| = 3$ présentent entre eux des croisements) et la seconde possédant un caractère non hydrogénoïde qui se manifeste par la présence d'anticroisements.

L'interaction spin-orbite associée aux orbitales $\ell > 2$ couple ces deux multiplicités, mais avec une intensité si faible que les niveaux $|m_\ell| = 2$ et $|m_\ell| = 3$ semblent se croiser.

En revanche pour les états $|m_j = \frac{3}{2}|$ et $|m_j = \frac{1}{2}|$ l'interaction entre les deux multiplicités $m_\ell = |m_j| + \frac{1}{2}$ et $m'_\ell = |m_j| - \frac{1}{2}$ due aux effets relativistes des niveaux P et D est si importante que l'on observe des anticroisements très marqués [38].

Pour juger de l'importance du mélange entre les états $m_\ell = 0$ et $|m_\ell| = 1$ associés à la même valeur $|m_j| = \frac{1}{2}$, nous avons construit au voisinage du niveau $n = 15$ la matrice associée aux états $n\ell$ ($\ell \geq 3$ $13 \leq n \leq 17$), nd ($14 \leq n \leq 18$), np ($16 \leq n \leq 20$) et ns ($16 \leq n \leq 20$).

Cette matrice de dimension 145 tient compte de l'effet du champ électrique extérieur, du potentiel non coulombien vu par l'électron optique, de l'interaction spin-orbite et des effets relativistes induits par le champ électrique.

Pour un champ $F = 9950$ V/cm, le mélange d'états $m_\ell = 0$ et $|m_\ell| = 1$ est particulièrement important au voisinage des anticroisements, puisqu'il peut atteindre la valeur de (70% - 30%).

Notons que ce calcul ne tient pas compte de l'élargissement des niveaux dû à l'ionisation par champ ; si on tient compte de l'élargissement spectral des niveaux, beaucoup d'états associés à des valeurs différentes de m_ℓ peuvent être dégénérés, ce qui a pour effet de mélanger fortement les états $m_\ell = 0$ et $|m_\ell| = 1$.

Dans le cas du rubidium une preuve expérimentale de l'importance des phénomènes d'anticroisements, entre états de $|m_\ell|$ différents, dus à l'interaction spin-orbite est apparue dans l'étude de l'ionisation par champ de l'état 19S.

Il apparaît en effet des seuils d'ionisation multiples dus à des traversées d'anticroisements de niveaux partiellement adiabatiques [68].

C 3.2. Etude des profils

L'étude des spectres de photoionisation en présence d'un champ électrique de l'état $5\ ^2P_{\frac{3}{2}}$ $F = 4$ $M_F = 4$ de l'atome de rubidium a permis de mettre en évidence l'importance de la perturbation liée à l'interaction spin-orbite au voisinage de la limite d'ionisation en champ nul. En effet cette interaction couple des états dont les valeurs de m_ℓ sont différentes et fait apparaître dans les spectres des structures qui seraient interdites dans un modèle où le spin de l'électron serait négligé.

Comme les profils observés dans les trois spectres $\sigma^+\sigma^-$, $\sigma^+\Pi$ et $\sigma^+\sigma^+$ sont très différents, nous avons été amenés à attribuer les mêmes nombres quantiques paraboliques $(n\ n_1\ m_\ell)$ aux résonances localisées aux mêmes énergies dans les spectres $|m_j| = m_\ell + \frac{1}{2}$ et $|m'_j| = m_\ell - \frac{1}{2}$, mais dont les profils et les largeurs spectrales sont différents .

Ainsi la résonance observée dans le spectre $m_j = m_\ell + \frac{1}{2}$ est beaucoup plus large que celle apparaissant dans le spectre $m'_j = m_\ell - \frac{1}{2}$.

Nous avons attribué aux états $m_\ell = 1$ les résonances étroites du spectre $\sigma^+\sigma^-$ $(m_j = \frac{1}{2})$ ainsi que les résonances larges du spectre $\sigma^+\Pi$ $(m_j = \frac{3}{2})$.

Il peut paraître surprenant que le même état $|n\ n_1\ |m_\ell|\rangle$ puisse être observé de façon différente suivant le spectre étudié.

En fait, dans un spectre de photoionisation, on n'observe pas la densité d'états du continuum , mais la densité de forces d'oscillateurs, ces deux grandeurs pouvant varier avec l'énergie de façon très

différente comme nous l'avons déjà vu lors de l'interprétation des oscillations observées dans les spectres de photoionisation en présence d'un champ au-delà de $E = 0$.

Pour étudier les principales caractéristiques des profils de raies observées dans les différents spectres de photoionisation de l'état $5\,^2P_{\frac{3}{2}}$ $F = 4$ $M_F = 4$ de l'atome de rubidium, nous avons utilisé le formalisme introduit par Fano [31] . Le système étudié est présenté sur la figure IV 13.

L'hamiltonien d'ordre zéro H_o est l'hamiltonien Stark de l'atome d'hydrogène ; son spectre comprend des états discrets caractérisés par les nombres quantiques (n, n_1, m_ℓ, m_s) et des états des continuums (E, n_1, m_ℓ, m_s) . Ces états sont perturbés soit :

- par l'interaction ΔV associée au caractère non coulombien du potentiel central dans l'atome de rubidium. Cette interaction ΔV couple les états caractérisés par des mêmes valeurs de m_ℓ et de m_s .

- par l'interaction spin-orbite Λ qui couple les états de même valeur de m_j , mais dont les valeurs de m_ℓ et de m_s diffèrent au plus d'une unité.

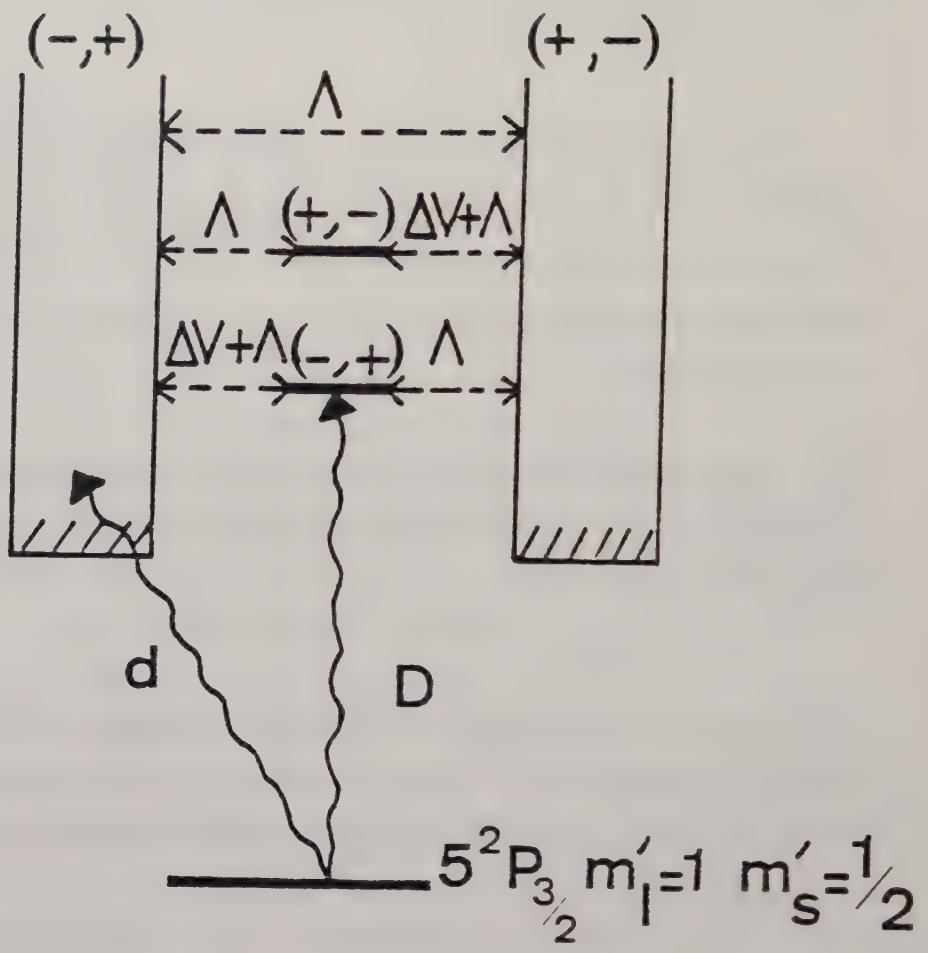
En conséquence les fonctions propres de l'hamiltonien $(H_0 + \Delta V + \Lambda)$ associées à une valeur donnée de $| m_j |$ s'écrivent :

$$\Phi_E = \sum a(E)\, \varphi_d^+ + \sum b(E)\, \varphi_d^- + \int c(E')\, \Psi_{E'}^+\, dE' + \int d(E')\, \Psi_{E'}^-\, dE'$$

où φ_d^+ et φ_d^- représentent respectivement les fonctions d'ondes des états discrets $m_\ell = |m_j| - \frac{1}{2}$ $m_s = \frac{1}{2}$ et $m_\ell = |m_j| + \frac{1}{2}$ $m_s = -\frac{1}{2}$,

et $\Psi_{E'}^+$ et $\Psi_{E'}^-$ les fonctions d'ondes des états des continuums $m_\ell = |m_j| - \frac{1}{2}$ $m_s = +\frac{1}{2}$ et $m_\ell = |m_j| + \frac{1}{2}$ $m_s = -\frac{1}{2}$.

Considérons des transitions dipolaires électriques issues d'un



$(-,+)$ $m_l=m_j-1/2$ $m_s=1/2$

$(+,-)$ $m_l=m_j+1/2$ $m_s=-1/2$

FIGURE IV-13

Schéma des différents états et interactions intervenant dans l'étude de la photoionisation en présence d'un champ électrique de l'état $5\ ^2P_{3/2}$ $F=M_F=4$ du rubidium (^{85}Rb)

ΔV : partie non coulombienne du potentiel central.

Λ : interaction spin-orbite.

niveau discret non perturbé de nombre quantique $m'_\ell = 1$ $m'_s = \frac{1}{2}$, ce qui est le cas du niveau $5\ ^2P_{\frac{3}{2}}$ $F = 4$ $M_F = 4$.

Ces transitions excitent uniquement les états φ_d^+ et $\Psi_{E'}^+$, car l'opérateur dipolaire électrique n'agit pas sur le spin de l'électron.

Nous supposons négligeable l'interaction $(\Delta V + \Lambda)$ qui couple les deux continuums, parce que son traitement explicite est très complexe.

Si l'on admet que les états discrets φ_d^+ et φ_d^- peuvent être étudiés séparément - c'est à dire qu'ils ne sont pas couplés entre eux par la perturbation $(\Delta V + \Lambda)$ et que leurs largeurs spectrales dues à leurs interactions avec les états du continuum sont faibles devant leur différence d'énergie - alors le spectre observé comportera des profils de Fano indépendants.

La largeur de la résonance associée au niveau discret φ_d^+ $(m_\ell = m_j - \frac{1}{2}$, $m_s = +\frac{1}{2})$ est déterminée par l'intensité de la perturbation $(\Delta V + \Lambda)$; son paramètre q dépend des valeurs respectives de $(\Delta V + \Lambda)$ et de la valeur des éléments de matrice D et d de l'opérateur transition vers l'état discret considéré et vers le continuum $\Psi_{E'}^+$, $(m_s = \frac{1}{2})$.

Quant à la résonance associée au niveau discret φ_d^- $(m_\ell = m_j + \frac{1}{2}$, $m_s = -\frac{1}{2})$, sa largeur est déterminée uniquement par l'interaction Λ et son paramètre q est nul, puisque l'état discret φ_d^- ne peut pas être atteint par une transition dipolaire électrique à partir de l'état fondamental.

Cette analyse montre donc qu'un niveau discret correspondant à des valeurs données de n, n_1, $|m_\ell|$ peut apparaître de façon différente, quand on l'observe dans des spectres de photoionisation caractérisés par des valeurs différentes du nombre quantique magnétique

total $|m_j|$. Si la perturbation liée au caractère non coulombien du potentiel central est beaucoup plus importante que l'interaction spin-orbite, la résonance apparaît alors avec un profil large dans le spectre $m_j = m_\ell + \frac{1}{2}$ et avec un profil étroit dans le spectre $m_j = m_\ell - \frac{1}{2}$.

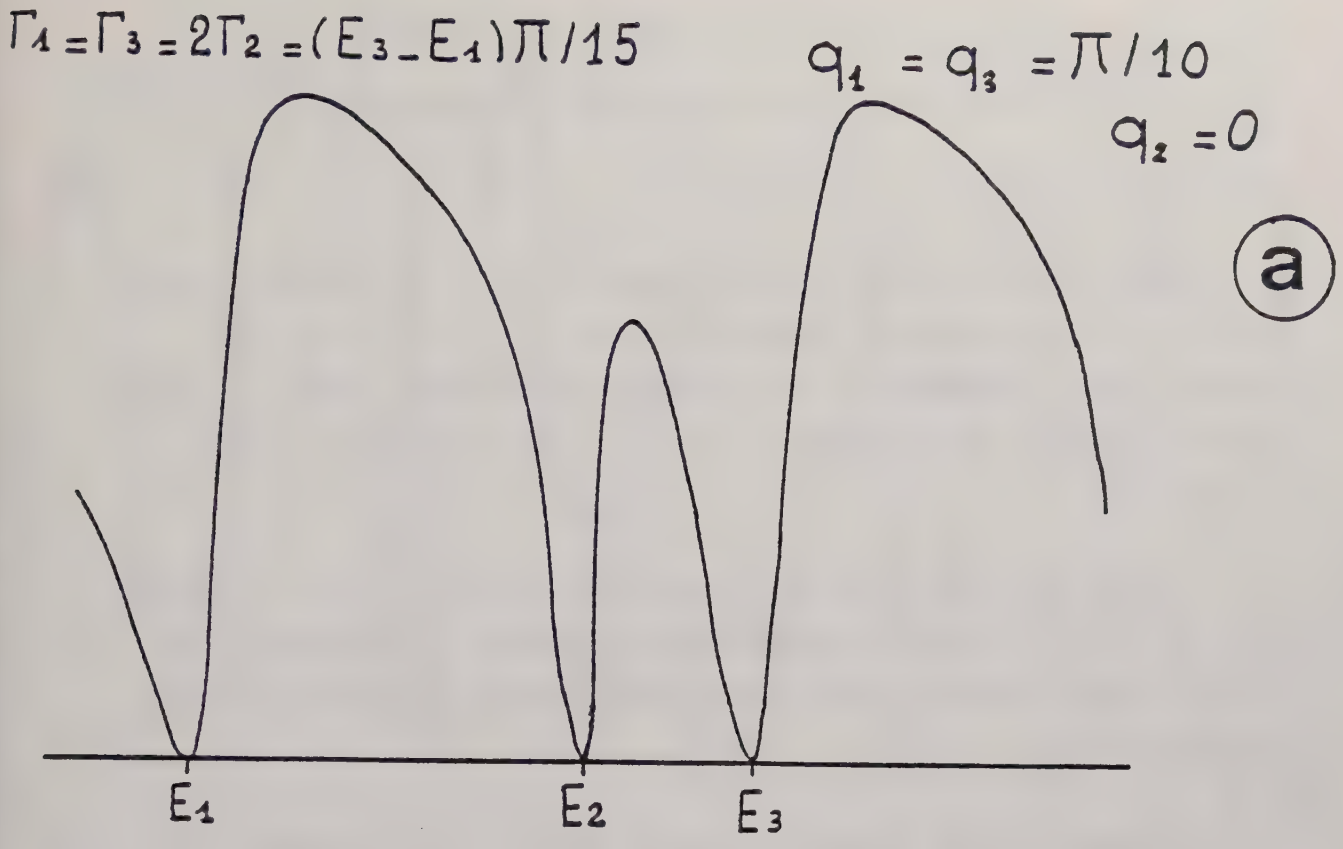
En fait comme nous l'avons déjà signalé dans le chapitre III, si les perturbations ΔV et Λ induisent des élargissements spectraux importants par rapport à l'écart en énergie des deux états discrets, seule une étude globale très complexe faisant intervenir tous les états discrets permet de rendre compte du spectre expérimental de photoionisation.

Dans le but d'interpréter au moins qualitativement les profils de raies observés et d'expliquer en particulier l'apparition de structures liées aux états $m_\ell = m_j + \frac{1}{2}$ $m_s = -\frac{1}{2}$ (non directement peuplés à partir de l'état $5\,{}^2P_{\frac{3}{2}}$ $m_\ell = 1$ $m_s = +\frac{1}{2}$) nous avons étudié un modèle simple comportant trois niveaux couplés à un même continuum.

En effet il apparaît dans chacun des trois spectres $\sigma^+\sigma^-$, $\sigma^+\Pi$ et $\sigma^+\sigma^+$ deux séries de résonances alternées. Les caractéristiques associées aux niveaux d'une série donnée (intensité du couplage, valeur de l'élément de matrice de l'opérateur transition) varient peu d'un niveau à l'autre ; en revanche les deux séries peuvent avoir des propriétés fondamentalement différentes.

Les trois niveaux non perturbés ont des énergies égales à E_1, E_2 et E_3. Les paramètres Γ et q associés aux trois résonances sont : $\Gamma_1 = \Gamma_3$, $q_1 = q_3$ et $q_2 = 0$, où les états d'énergies E_1 et E_3 appartiennent à la série $m_s = \frac{1}{2}$ et l'état d'énergie E_2 à la série $m_s = -\frac{1}{2}$.

L'excitation $\sigma^+\sigma^-$ permet d'atteindre les états $|m_j| = \frac{1}{2}$



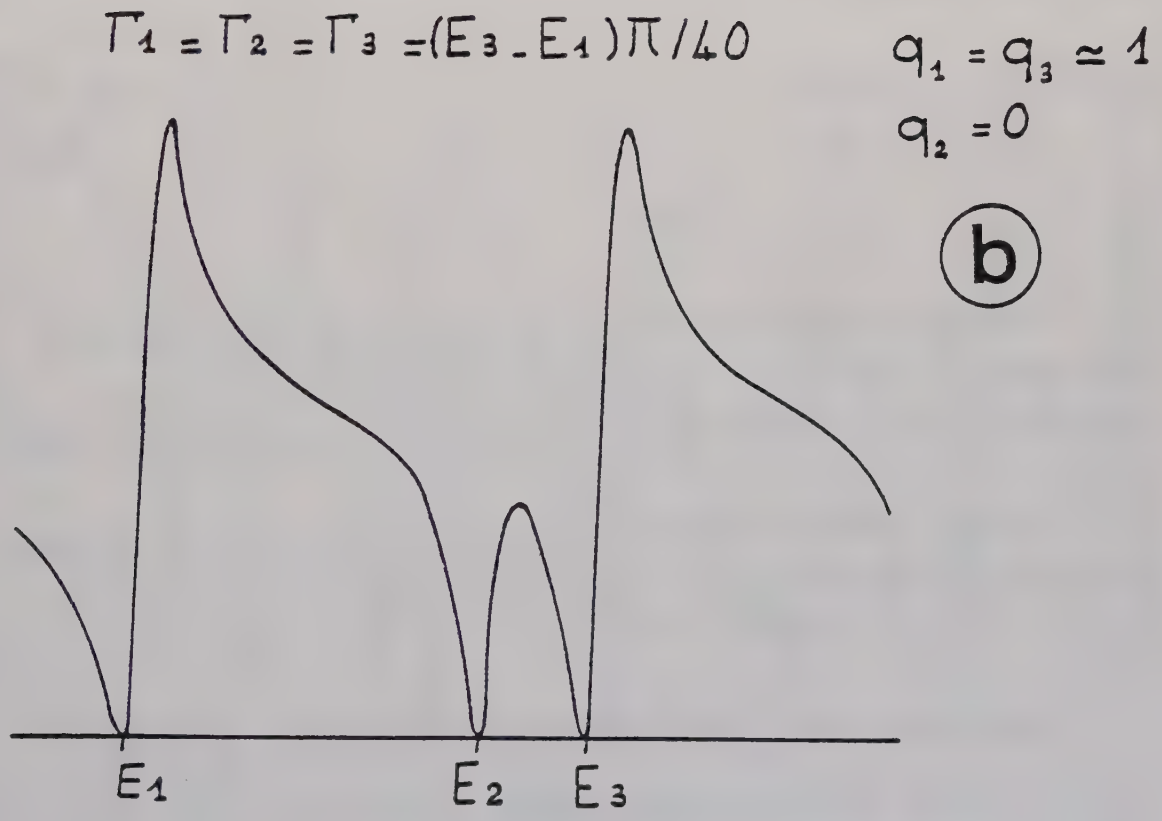


FIGURE IV-14 a et b

Profils de structures calculés compte tenu de l'interaction spin-orbite.

auxquels on peut associer la série d'états ($m_\ell = 0$, $m_s = \frac{1}{2}$) qui sont peuplés directement à partir de l'état $5\,^2P_{\frac{3}{2}}$, ainsi que la série d'états ($m_\ell = 1$, $m_s = -\frac{1}{2}$) .

Comme le caractère non coulombien des états S du rubidium, associé à une valeur élevée du défaut quantique ($\delta_s = 3{,}13$) , est beaucoup plus important que le couplage spin-orbite des états P , nous avons été amené à choisir pour Γ_1 et Γ_2 des valeurs telles que $\Gamma_1 > \Gamma_2$.

D'autre part, les raies observées dans le spectre $\sigma^+\sigma^-$ au voisinage de $E = 0$ n'ayant ni des profils lorentziens, ni des profils de Fano typiquement asymétriques, nous avons attribué des valeurs faibles au paramètre q_1 .

La figure IV 14a présente le profil obtenu pour les valeurs suivantes des paramètres :

$q_1 = q_3 = 0{,}318$ $\quad q_2 = 0$

$\Gamma_1 = \Gamma_3 = 0{,}628$ $\quad \Gamma_2 = 0{,}308$

$E_1 = -2$ $\quad E_2 = 0$ $\quad E_3 = 1$

Le profil obtenu présente deux résonances larges légèrement dissymétriques et séparées par une résonance trois fois plus étroite, symétrique et dont l'intensité est comparable à celles des raies larges.

Ce profil permet de comprendre l'aspect du spectre $\sigma^+\sigma^-$ de photoionisation au voisinage de la résonance identifiée $n = 17$ $\quad n_1 = 15$ $m_\ell = 1$ $\quad m_s = -\frac{1}{2}$ (figure IV 15).

L'excitation $\sigma^+\sigma^+$ permet d'atteindre les états $|\, m_j \,| = \frac{5}{2}$ auxquels on peut associer les deux séries ($m_\ell = 2$ $\quad m_s = \frac{1}{2}$) et ($m_\ell = 3$ $\quad m_s = -\frac{1}{2}$) .

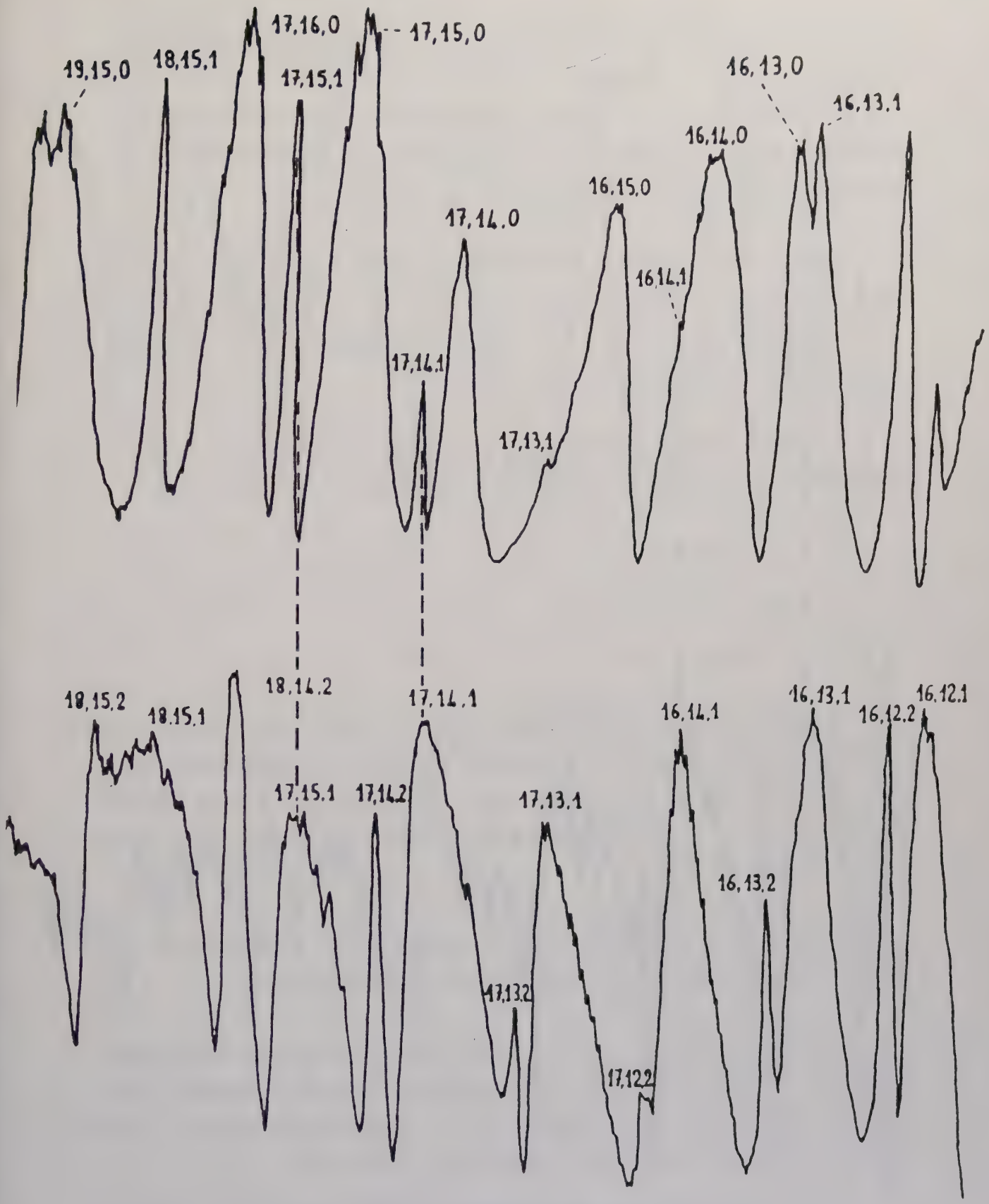


FIGURE IV-15

Enregistrements de spectres de photcionisation de l'atome de rubidium en excitation $\sigma^+\sigma^-$ et $\sigma^+\Pi$ au voisinage de la résonance $n=17$ $n_1=15$ $m_\ell=1$.

Comme le défaut quantique d'un état ℓ décroit quand ℓ croit, le spectre $|m_j| = \frac{5}{2}$ aura un caractère non coulombien moins prononcé que le spectre $m_j = \frac{1}{2}$. De plus l'interaction spin-orbite décroit également avec ℓ suivant une loi différente, si bien que Λ et ΔV peuvent être du même ordre de grandeur.

Pour rendre compte des structures observées dans le spectre $\sigma^+\sigma^+$, nous avons supposé que les interactions ΔV et Λ avaient des intensités comparables ($\Gamma_1 = \Gamma_2 = \Gamma_3$) et que les paramètres q des raies asymétriques étaient voisins de l'unité.

La figure IV 14b présente les profils de raies calculés à partir des valeurs suivantes des différents paramètres :

$$q_1 = q_3 = 0{,}955 \qquad q_2 = 0$$

$$\Gamma_1 = \Gamma_2 = \Gamma_3 = 0{,}157$$

$$E_1 = -1{,}5 \qquad E_2 = 0 \qquad E_3 = 0{,}5$$

Le spectre obtenu présente deux profils de Fano très dissymétriques, ressemblant à des courbes de dispersion et séparés par une résonance symétrique fine et un peu moins intense. On reproduit l'allure générale du spectre $\sigma^+\sigma^+$ au voisinage de l'état identifié $n = 16$, $n_1 = 12$, $m_\ell = 3$ $m_s = -\frac{1}{2}$ (figure IV 16) .

Cette étude d'un système à trois niveaux permet d'interpréter qualitativement les profils observés dans les spectres $\sigma^+\sigma^-$ et $\sigma^+\sigma^+$.

Remarquons cependant qu'il s'agit d'une étude très approchée dans la mesure où nous n'avons pas tenu compte des états du continuum $m_s = -\frac{1}{2}$ qui sont couplés aux états discrets φ_d^- et φ_d^+ soit par ΔV soit par Λ et aux états du continuum $m_s = \frac{1}{2}$ par l'interaction spin-orbite.

Notons que la perturbation mutuelle des deux continuums ne doit pas être très importante car il s'agit d'une interaction à courte portée

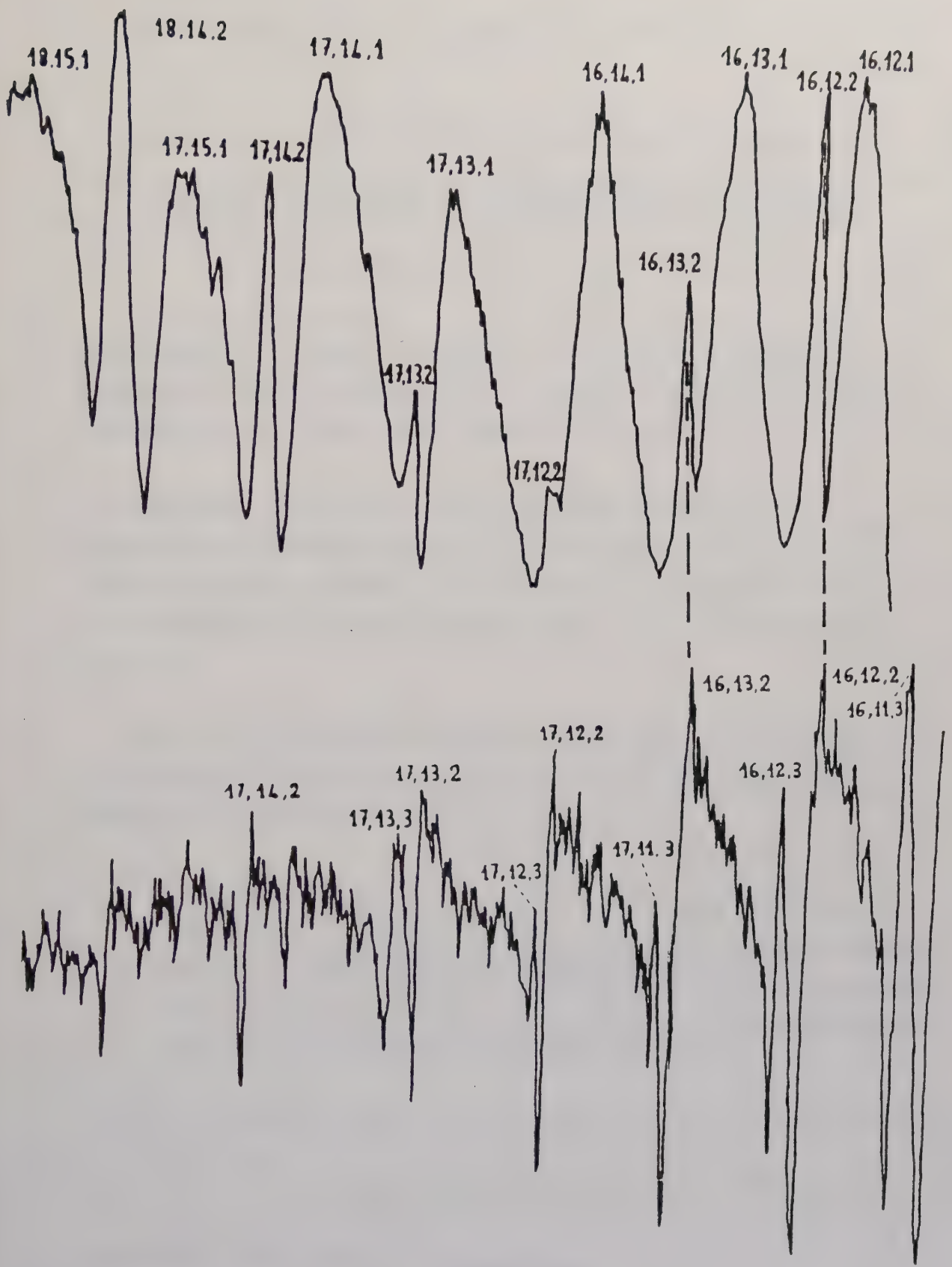


FIGURE IV-16

Enregistrements de spectres de photoionisation de l'atome de rubidium en excitation $\sigma^+\Pi$ et $\sigma^+\sigma^+$ au voisinage de la résonance $n=16$ $n_1=12$ $m_\ell=3$

($\frac{1}{r^3}$) et non pas à longue portée ($\sim r^2$) comme dans le cas du diamagnétisme.

En conclusion, l'étude expérimentale des spectres de photoionisation en présence d'un champ électrique de l'état $5\ ^2P_{\frac{3}{2}}$ $F = 4$ $M_F = 4$ de ^{85}Rb montre que l'interaction spin-orbite ne peut pas être négligée même au voisinage de la limite d'ionisation en champ nul.

Le caractère non coulombien est si important qu'il est impossible d'étudier les résonances de façon isolée, c'est à dire de se ramener à l'étude de l'interaction entre un seul niveau discret et un continuum.

Seule la méthode introduite par Fano [34, 35], qui repose sur la théorie du défaut quantique, pourrait être envisageable, puisqu'elle permet une étude globale des propriétés du spectre ; bien sûr dans un tel calcul il faudrait tenir compte des effets dus à l'interaction spin-orbite.

De plus les aspects des trois spectres $\sigma^+\sigma^-$, $\sigma^+\Pi$ et $\sigma^+\sigma^+$ sont notablement différents, ce qui montre que l'importance relative de l'interaction spin-orbite et du caractère non coulombien dépend de la valeur $|m_j|$ pour les états étudiés.

Enfin cette étude nous a permis de montrer qu'un état donné pouvait apparaître sous des aspects différents dans les spectres de photoionisation dans la mesure où la grandeur observable est une densité de forces d'oscillateurs et non pas une densité d'états.

ANNEXE

CALCUL DES POPULATIONS DES DIFFERENTS SOUS NIVEAUX ZEEMAN.

L'excitation continue σ^+ porte les atomes de sodium dans les états $|F=3\ M_F\rangle$. Comme la direction Oz du champ électrique $\vec{F}$ représente l'axe de quantification, le pompage optique transfère tous les atomes dans le sous niveau Zeeman $|F=3\ M_F=3\rangle$.

Appliquons au système atomique un champ magnétique $\vec{B}$ de direction Oz' perpendiculaire à $\vec{F}$ et prenons la direction de $\vec{B}$ comme axe de quantification ; les nouveaux états propres du système sont donnés par les vecteurs propres $|F=3\ M_{F'}\rangle$ de l'hamiltonien Zeeman H_Z .

Grâce à la matrice de rotation R pour $F=3$, on peut développer l'état initial $|\Psi(0)\rangle = |F=3\ M_F=3\rangle$ sur la base des états propres $|F=3\ M_{F'}\rangle$ de H_Z , soit :

$$|F=3\ M_F=3\rangle = \frac{1}{8}\Big[|F=3\ M_{F'}=3\rangle + \sqrt{6}\ |F=3\ M_{F'}=2\rangle + \sqrt{15}\ |F=3\ M_{F'}=1\rangle$$

$$+ \sqrt{20}\ |F=3\ M_{F'}=0\rangle + \sqrt{15}\ |F=3\ M_{F'}=-1\rangle$$

$$+ \sqrt{6}\ |F=3\ M_{F'}=-2\rangle + |F=3\ M_{F'}=-3\rangle\Big] \quad .$$

On obtient $|\Psi(t)\rangle$ en multipliant chaque coefficient du développement par $e^{-iE_{FM_{F'}}t/\hbar}$ où $E_{FM_{F'}} = M_{F'}\,\hbar\omega$ est la valeur propre de H_Z associée à l'état $|F=3\ M_{F'}\rangle$:

$$|\Psi(t)\rangle = \frac{1}{8}\Big| e^{-3i\omega t}\ |F=3\ ,\ M_{F'}=3\rangle + \sqrt{6}\ e^{-2i\omega t}\ |F=3\ ,\ M_{F'}=2\rangle$$

$$+ \sqrt{15}\ e^{-i\omega t}\ |F=3\ ,\ M_{F'}=1\rangle + \sqrt{20}\ |F=3\ ,\ M_{F'}=0\rangle$$

$$+ \sqrt{15}\ e^{i\omega t}\ |F=3\ ,\ M_{F'}=-1\rangle + \sqrt{6}\ e^{2i\omega t}\ |F=3\ ,\ M_{F'}=-2\rangle$$

$$+ e^{-3i\omega t}\ |F=3\ ,\ M_{F'}=-3\rangle\Big| \quad .$$

Moyennant un passage des états $|F=3\ ,\ M_{F'}\rangle$ aux états $|F=3\ ,\ M_F\rangle$ par l'intermédiaire de la matrice de rotation inverse, la fonction $|\Psi(t)\rangle$ s'écrit :

$$|\Psi(t)\rangle = \frac{1}{64}\left\{2\cos 3\omega t + 12\cos 2\omega t + 30\cos \omega t + 20\right\}|F=3\ M_F=3\rangle$$

$$+ \frac{1}{64}\left\{2i\sqrt{6}\sin 3\omega t + 8i\sqrt{6}\sin 2\omega t + 10i\sqrt{6}\sin \omega t\right\}|F=3\ M_F=2\rangle$$

$$+ \frac{1}{64}\left\{2\sqrt{15}\cos 3\omega t + 4\sqrt{15}\cos 2\omega t - 2\sqrt{15}\cos \omega t - 4\sqrt{15}\right\}|F=3\ M_F=1\rangle$$

$$+ \frac{1}{64}\left\{4i\sqrt{5}\sin 3\omega t - 12i\sqrt{5}\sin \omega t\right\}|F=3\ M_F=0\rangle$$

$$+ \frac{1}{64}\left\{2\sqrt{15}\cos 3\omega t - 4\sqrt{15}\cos 2\omega t - 2\sqrt{15}\cos \omega t + 4\sqrt{15}\right\}|F=3\ M_F=-1\rangle$$

$$+ \frac{1}{64}\left\{2i\sqrt{6}\sin 3\omega t - 8i\sqrt{6}\sin 2\omega t + 10i\sqrt{6}\sin \omega t\right\}|F=3\ M_F=-2\rangle$$

$$+ \frac{1}{64}\left\{2\cos 3\omega t - 12\cos 2\omega t + 30\cos \omega t - 20\right\}|F=3\ M_F=-3\rangle \ .$$

On peut ainsi voir que l'atome a une probabilité de 99% d'être encore au bout du temps $t = 16$ ns dans l'état initial $|F=3\ M_F=3\rangle$.

On rappelle que la matrice de rotation R (une rotation de 90°") pour un moment cinétique égal à 3 est donnée par

$$R = \frac{1}{8}\begin{bmatrix} 1 & -\sqrt{6} & \sqrt{15} & -\sqrt{20} & \sqrt{15} & -\sqrt{6} & 1 \\ \sqrt{6} & -4 & \sqrt{10} & 0 & -\sqrt{10} & 4 & -\sqrt{6} \\ \sqrt{15} & -\sqrt{10} & -1 & \sqrt{12} & -1 & -\sqrt{10} & \sqrt{15} \\ \sqrt{20} & 0 & -\sqrt{12} & 0 & \sqrt{12} & 0 & -\sqrt{20} \\ \sqrt{15} & \sqrt{10} & -1 & -\sqrt{12} & -1 & \sqrt{10} & \sqrt{15} \\ \sqrt{6} & 4 & \sqrt{10} & 0 & -\sqrt{10} & -4 & -\sqrt{6} \\ 1 & \sqrt{6} & \sqrt{15} & \sqrt{20} & \sqrt{15} & \sqrt{6} & 1 \end{bmatrix}$$

Chapitre V

INTERACTION DES ETATS EXCITES DU RUBIDIUM AVEC UN CHAMP ELECTROMAGNETIQUE INTENSE NON RESONNANT

Jusqu'à présent nous avons étudié l'interaction de l'électron optique d'un système atomique dans un état de Rydberg (état faiblement lié) avec un champ électrique statique extérieur.

Dans ce chapitre, nous nous proposons de décrire une expérience qui a été faite dans le but de montrer l'influence d'un fort champ électromagnétique sur les niveaux d'énergie des états de Rydberg . Cette expérience a été initiée par un travail théorique effectué par P. AVAN et al. [91] et il nous est apparu que le système expérimental précédemment décrit se prétait bien, sans trop de modification , à une telle étude.

Dans leur article, P. AVAN et al. ont montré que lorsqu'un électron faiblement lié est soumis à un champ électromagnétique

$$\mathcal{E}(z,t) = \sqrt{2}\,\mathcal{E}\sin(\omega t - kz)$$

(où $\mathcal{E}$ représente l'amplitude efficace du champ électrique), son énergie est perturbée et subit un accroissement ΔE dont le terme du premier ordre s'écrit :

$$\Delta E = \frac{e^2\,\mathcal{E}^2}{2m\,\omega^2}$$

où m et e sont respectivement la masse et la charge de l'électron. Ce terme possède en fait une interprétation physique extrêmement simple: il s'agit de l'énergie moyenne de vibration qu'acquiert l'électron dans le champ électromagnétique et son calcul peut être mené de façon purement classique. Ce résultat simple n'est cependant obtenu que moyennant une condition fondamentale sur les niveaux d'énergie de l'électron : leur domaine d'extension doit être bien inférieur à $\hbar\omega$, c'est-à-dire $E_{n\ell} \ll \hbar\omega$ (1) où $E_{n\ell}$ est l'énergie de liaison de l'électron.

En fait, si l'on considère uniquement les niveaux de Rydberg d'un atome, le déplacement en énergie ΔE_i représente le déplacement d'un niveau i produit par l'ensemble infini des autres niveaux plongés dans le champ électromagnétique, y compris ceux du continuum. Imposer la condition (1) revient à éviter toute interaction radiative quasi-résonnante entre le niveau de Rydberg considéré et les niveaux profonds de l'atome. Une telle condition est évidemment satisfaite pour des séries de Rydberg possédant une valeur du nombre quantique orbital ℓ suffisamment élevée. On a alors $n > \ell$ et les énergies $E_{n\ell}$ sont telles que $E_{n\ell} < \frac{R}{\ell^2}$ (R : constante de Rydberg).

La théorie des perturbations montre que le déplacement en énergie ΔE peut également s'écrire sous la forme :

$$\Delta E_i = \sum_{\substack{j \text{ tel que} \\ E_{ij} \ll \hbar\omega}} \frac{\langle i|T|j\rangle \langle j|T|i\rangle}{E_{ij} - \hbar\omega} + \frac{\langle i|T|j\rangle \langle j|T|i\rangle}{E_{ij} + \hbar\omega}$$

où $E_{ij} = E_i - E_j$ (différence des énergies non perturbées) et T désigne l'opérateur transition dipolaire électrique.

Le calcul d'une telle somme est relativement complexe. Une estimation en a cependant été donnée dans le cas particulier de notre expérience.

Il est à noter que le traitement théorique effectué dans la référence [91], basé sur la méthode du hamiltonien effectif, est très bien adapté à une étude entièrement quantique du phénomène. Comme dans tout traitement de ce type, les phénomènes dus au champ électromagnétique extérieur et ceux dus aux fluctuations du vide apparaissent comme intimement liés. Il s'ensuit que l'énergie de l'électron perturbé est modifiée par un terme de correction radiative qui est la somme de deux termes, l'un correspondant à des corrections stimulées et le second à des corrections spontanées.

Le problème qui nous intéresse ici correspond à la partie principale

du terme de correction stimulée. On peut noter qu'une partie du terme de correction spontanée rend compte de l'effet de déplacement de Lamb (Lamb shift).

CONDITIONS DE MISE EN EVIDENCE DU DEPLACEMENT EN ENERGIE.

Le déplacement en énergie est quasi identique pour l'ensemble des niveaux de Rydberg concernés ; aussi il n'est pas possible de le mettre en évidence en étudiant les fréquences de transition entre ces niveaux. En revanche les niveaux profonds de l'atome et, en particulier, le niveau fondamental, subissent un déplacement en énergie différent dû principalement à la proximité d'un niveau de résonance.

Ce déplacement, s'il n'est pas aisément mesurable expérimentalement comme nous le verrons par la suite, peut cependant être calculé avec une bonne approximation.

Le système atomique sur lequel a été effectué cette expérience est celui de l'atome de rubidium dont nous avons présenté le schéma des niveaux d'énergie sur la Figure V 1. Ce système permet une étude à très haute résolution des états de Rydberg directement excités à partir de l'état fondamental $5\ ^2S_{1/2}$. Les expériences d'excitation multiphotonique permettent également d'atteindre des états très excités dont le moment cinétique orbital ℓ est élevé, ce qui permet de satisfaire la condition $\ell >> 1$ [91]. Toutefois comme ces expériences nécessitent d'importantes puissances infrarouges , le déplacement en énergie de ces états excités apparaît comme une somme de deux déplacements dont l'un est dû à la radiation d'excitation et l'autre à la radiation non résonnante. Le champ électromagnétique perturbateur est celui d'un laser Nd-YAG accordé sur la longueur d'onde 1,06 μ . Nous avons représenté les principaux effets de ce champ électromagnétique sur la Figure V 1. Nous observons que, outre l'effet recherché, il faudra prendre en considération non seulement le déplacement de l'état fonda-

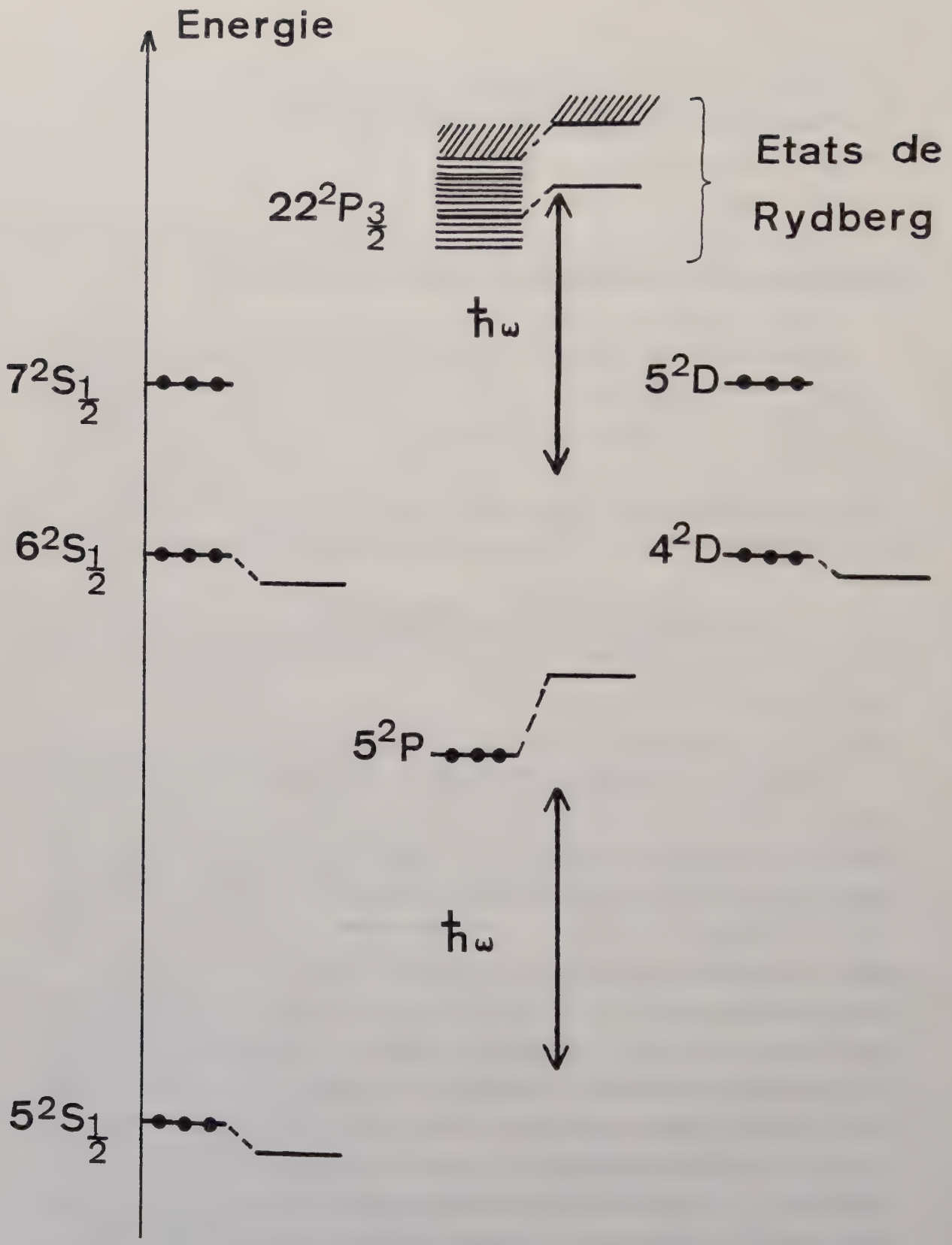


FIGURE V-1

Diagramme des niveaux d'énergie de l'atome de rubidium en l'absence (.-.-.) et en présence (———) du rayonnement infrarouge (λ = 1,06μ).

mental, mais également un effet de déplacement des niveaux de Rydberg dû à la présence des niveaux 4D , 5D , 6S et 7S .

Nous allons examiner indépendamment ces deux effets.

1°) Le déplacement du niveau fondamental.

Celui-ci a été calculé à partir des fonctions d'ondes dans l'approximation du champ central, lesquelles décrivent parfaitement bien le spectre d'énergie. Le résultat, qui prend en compte tous les niveaux y compris ceux du continuum, a donné un déplacement de -26,3 MHz/MW.cm^{-2} pour le niveau $5\ ^2S_{1/2}$ et +107 MHz/MW.cm^{-2} pour le niveau $5\ ^2P_{3/2}$ [92].

Ce résultat montre que le déplacement de la transition de résonance $5\ ^2S_{1/2} \rightarrow 5\ ^2P_{3/2}$ est loin d'être celui que l'on obtiendrait en considérant uniquement un système à deux niveaux (dans ce cas les deux déplacements seraient égaux et de signes opposés). Le niveau supérieur $5\ ^2P_{3/2}$ est en effet perturbé à la fois par le niveau fondamental et principalement par les niveaux $6\ ^2S$ et $4\ ^2D$. C'est pour cette raison qu'il n'est pas possible de mesurer expérimentalement le déplacement du niveau fondamental.

2°) Le déplacement du niveau de Rydberg par les niveaux profonds de l'atome.

Ce calcul a été effectué de la même façon que précédemment. On peut observer que les quatre niveaux 4D , 6S et 5D , 7S susceptibles d'influencer de façon importante le niveau de Rydberg étudié sont placés de telle façon par rapport au niveau virtuel d'énergie $E_{n\ell} - \hbar\omega$ que leurs effets se détruisent partiellement. Signalons toutefois que le plus important de ces effets est celui du niveau 5D et que son calcul a donné une valeur de 3 MHz/MW.cm^{-2} .

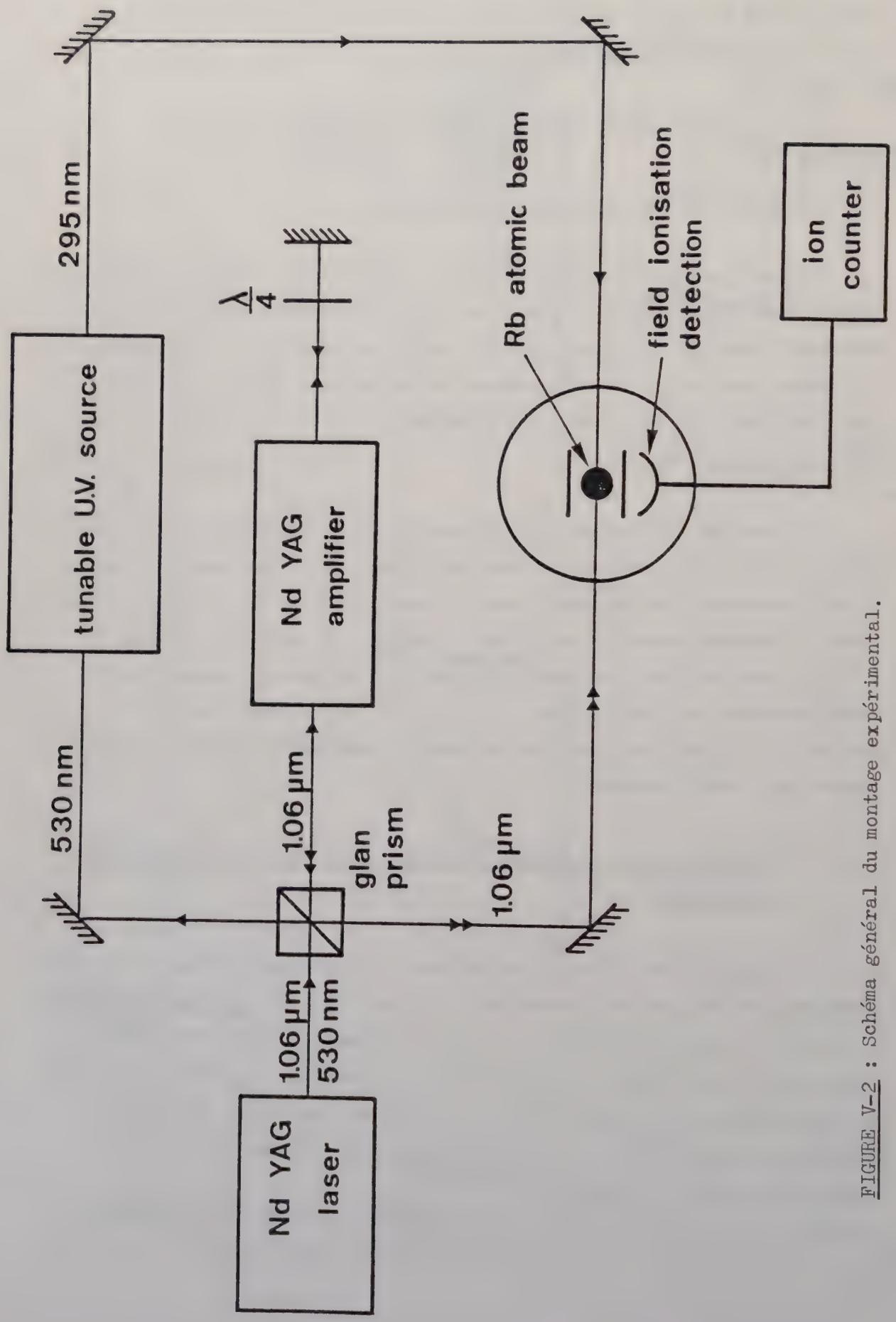


FIGURE V-2 : Schéma général du montage expérimental.

DISPOSITIF EXPERIMENTAL.

L'expérience a été réalisée sur un jet atomique de rubidium naturel en utilisant une détection des atomes portés dans un état de Rydberg par champ électrique telle qu'elle a été décrite au Chapitre II. Il est à remarquer que, le déplacement recherché dépendant de la densité de puissance du faisceau perturbateur issu d'une source intense pulsée, un soin tout particulier devra être pris pour que les atomes analysés voient un champ électromagnétique uniforme spatialement et temporellement.

Afin qu'il y ait une parfaite synchronisation entre le faisceau laser perturbateur et le faisceau laser d'analyse, les deux impulsions sont issues d'une même source (un laser Nd-YAG) comme le montre la Figure V 2. En effet, cette source à la longueur d'onde 1,06 μ est doublée en fréquence par un cristal placé à l'intérieur de la cavité laser et, en remplaçant le miroir de sortie hautement réfléchissant (utilisé pour obtenir le maximum de puissance à la longueur d'onde $\lambda = 5320$ Å) par un miroir partiellement réfléchissant, il est possible de sortir simultanément les radiations de longueur d'onde $\lambda = 1,06\ \mu$ et $\lambda = 5320$ Å .

Le rayonnement à $\lambda = 5320$ Å est utilisé comme précédemment (voir le Chapitre II pour le laser monomode pulsé) tandis que celui à $\lambda = 1,06\ \mu$, dont les impulsions ont une énergie de l'ordre de 0,5 mJ, est amplifié par un amplificateur à Nd-YAG fonctionnant en double passage. Le montage représenté sur la Figure V 2 comprend un prisme de Glan et une lame quart d'onde pour le rayonnement $\lambda = 1,06\ \mu$, ce qui permet un parfait découplage de l'amplificateur avec le miroir de sortie de la cavité du laser Nd-YAG .

Ainsi nous avons obtenu des énergies de 9 mJ par impulsion.

Les deux faisceaux lasers ($\lambda = 1,06\ \mu$ et $\lambda \simeq 3000$ Å) sont envoyés en sens opposés et perpendiculairement au jet atomique.

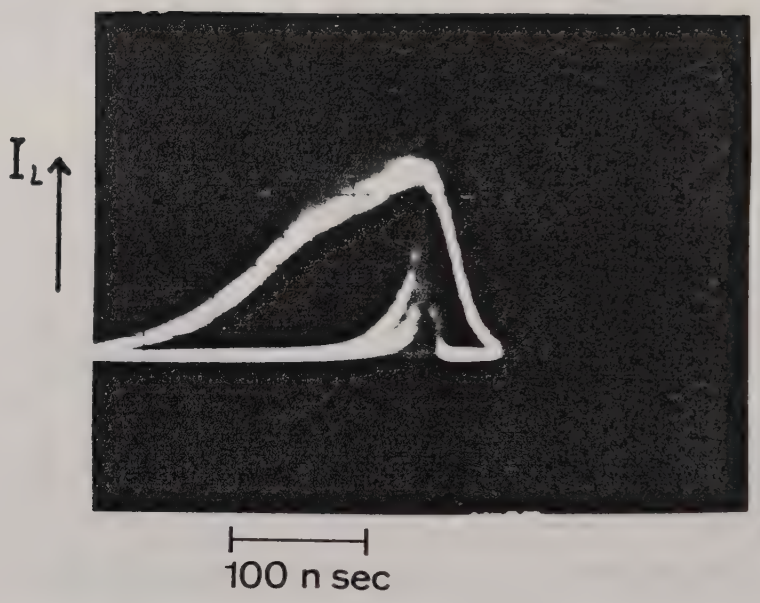


FIGURE V-3

Formes des impulsions lasers infrarouge

(durée 140 ns) et ultra-violette (durée 20 ns)

La photo V 3 représente la forme des impulsions vues à l'oscilloscope. La largeur des impulsions à $\lambda = 1{,}06\ \mu$ est de l'ordre de 140 ns et on peut remarquer que le faisceau sonde U.V., délivré par le laser monomode pulsé, arrive lorsque la puissance à 1,06 μ est à son maximum.

D'autre part, une analyse de l'intensité du faisceau perturbateur $\lambda = 1{,}06\ \mu$ sur une section transversale à une position image de la zone d'interaction avec le jet atomique a montré qu'il possédait une symétrie circulaire et que son diamètre était de l'ordre de 0,8 mm (ce diamètre est mesuré à $\frac{I_{max}}{2}$). L'énergie par impulsion dans la zone d'interaction est calculée à partir de l'énergie mesurée à la sortie de la source à 1,06 μ en tenant compte de l'ensemble des pertes sur le trajet (miroirs, fenêtres du jet atomique, etc...). Le facteur correctif correspondant a été mesuré expérimentalement.

La dimension du faisceau U.V. ($\lambda \simeq 3000$ Å) est beaucoup plus petite que celle du faisceau infrarouge ($\lambda = 1{,}06\ \mu$) afin de ne sonder que les atomes perturbés par la partie centrale de ce dernier.

RESULTATS EXPERIMENTAUX.

L'expérience a été effectuée sur la transition $5s\ ^2S_{1/2} \rightarrow 22p\ ^2P_{3/2}$ de l'isotope le plus abondant du rubidium (^{85}Rb) dans un mélange naturel.

Chaque enregistrement montre un doublet dû à la structure hyperfine de l'état fondamental. L'écart entre les deux composantes hyperfines ($\Delta\nu = 3035$ MHz) permet de calibrer l'échelle des fréquences.

L'isotope de masse 87 possède une structure hyperfine ($\Delta\nu = 6834$ MHz) beaucoup plus large que celle de l'isotope de masse 85 et n'apparaît pas ainsi sur les enregistrements effectués.

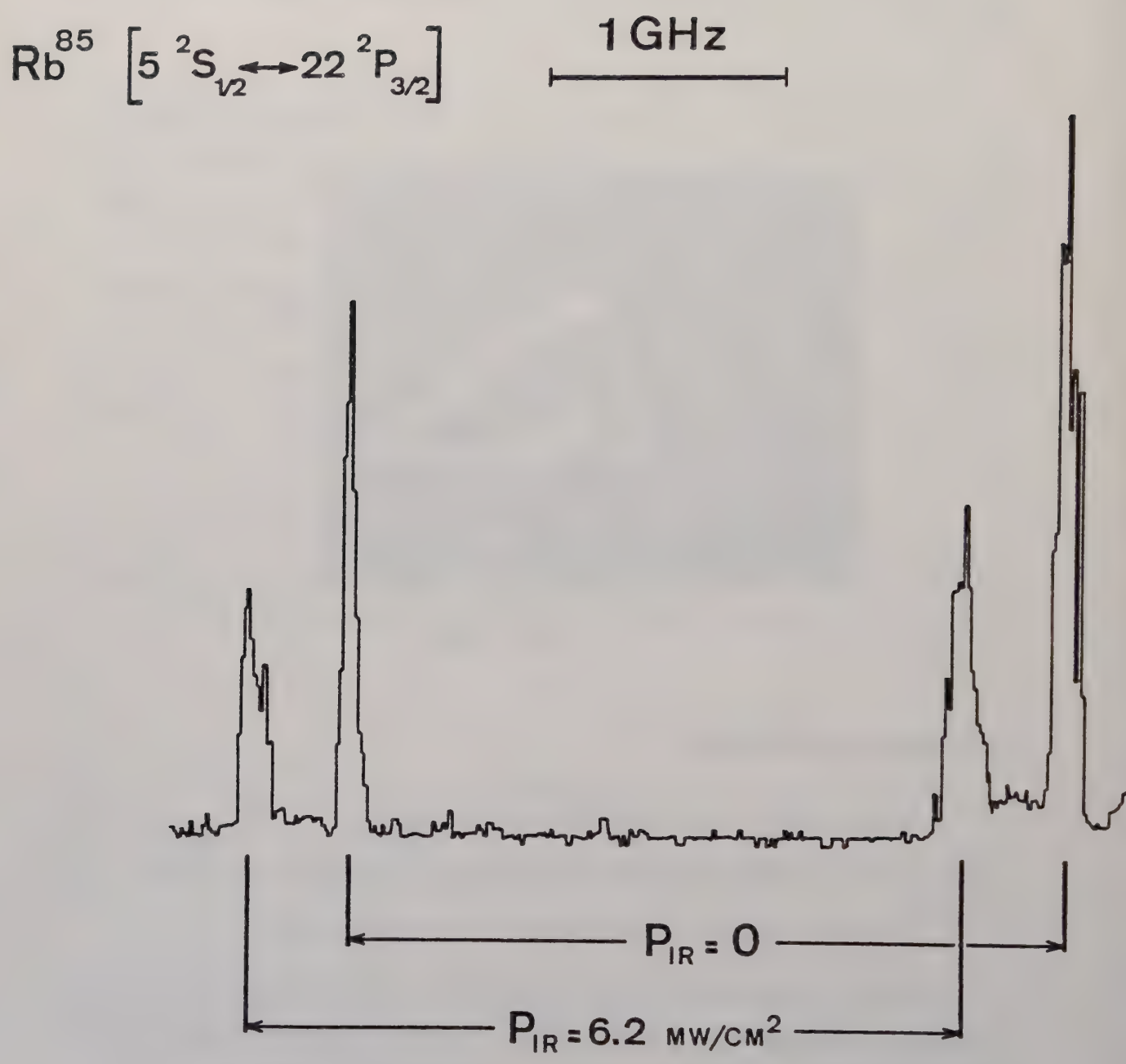


FIGURE V-4

Enregistrement de la transition $5\ ^2S_{1/2} \rightarrow 22\ ^2P_{3/2}$

en présence et en l'absence de la perturbation infrarouge.

Les spectres avec et sans faisceau I.R. sont enregistrés au cours d'un même balayage en fréquence du laser sonde U.V., ce qui permet de déduire aisément une mesure absolue du déplacement recherché.

La Figure V 4 montre un enregistrement typique de la transition $5\ ^2S_{1/2} \rightarrow 22\ ^2P_{3/2}$ sans la perturbation ($P_{IR} = 0$) et en présence du faisceau infrarouge ($P_{IR} = 6{,}2$ MW/cm^2) . On peut remarquer que les résonances déplacées sont légèrement élargies, ce qui peut être interprété comme étant dû d'une part à des inhomogénéités résiduelles du faisceau I.R. dans la région sondée par le faisceau U.V. et, d'autre part, aux fluctuations propres de son intensité crête.

Un ordre de grandeur de ces inhomogénéités peut être donné avec le rapport de l'élargissement $\delta(\Delta\nu)$ au déplacement $\Delta\nu$ mesurés sur l'enregistrement. On obtient :

$$\frac{\Delta I}{I} = \frac{\delta(\Delta\nu)}{\Delta\nu} \simeq \frac{60}{420} \simeq 14\% \quad .$$

Les résultats de plusieurs expériences effectuées avec des puissances I.R. variables ont été reportés sur le diagramme de la Figure V 5. Ce diagramme représente le déplacement global $\Delta\nu = \nu - \nu_0 = \Delta\nu_e + \Delta\nu_g$ ($\Delta\nu_g$ et $\Delta\nu_e$ sont les déplacements en énergie des niveaux $5\ ^2S_{1/2}$ et $22\ ^2P_{3/2}$) de la transition étudiée en fonction de la puissance P du faisceau perturbateur infrarouge.

Nous pouvons faire quelques observations :

1°) Tous les points expérimentaux s'alignent assez bien sur une droite passant par l'origine, ce qui montre que le déplacement en énergie est linéaire en fonction de la puissance P comme on s'y attendait.

2°) La pente de cette droite est de l'ordre de 61 MHz/MW.cm^{-2} . Elle s'écarte sensiblement de la pente calculée à partir des estimations théoriques (51 MHz/MW.cm^{-2}) faites à partir des déplacements en énergie $\Delta\nu_e$ et $\Delta\nu_g$.

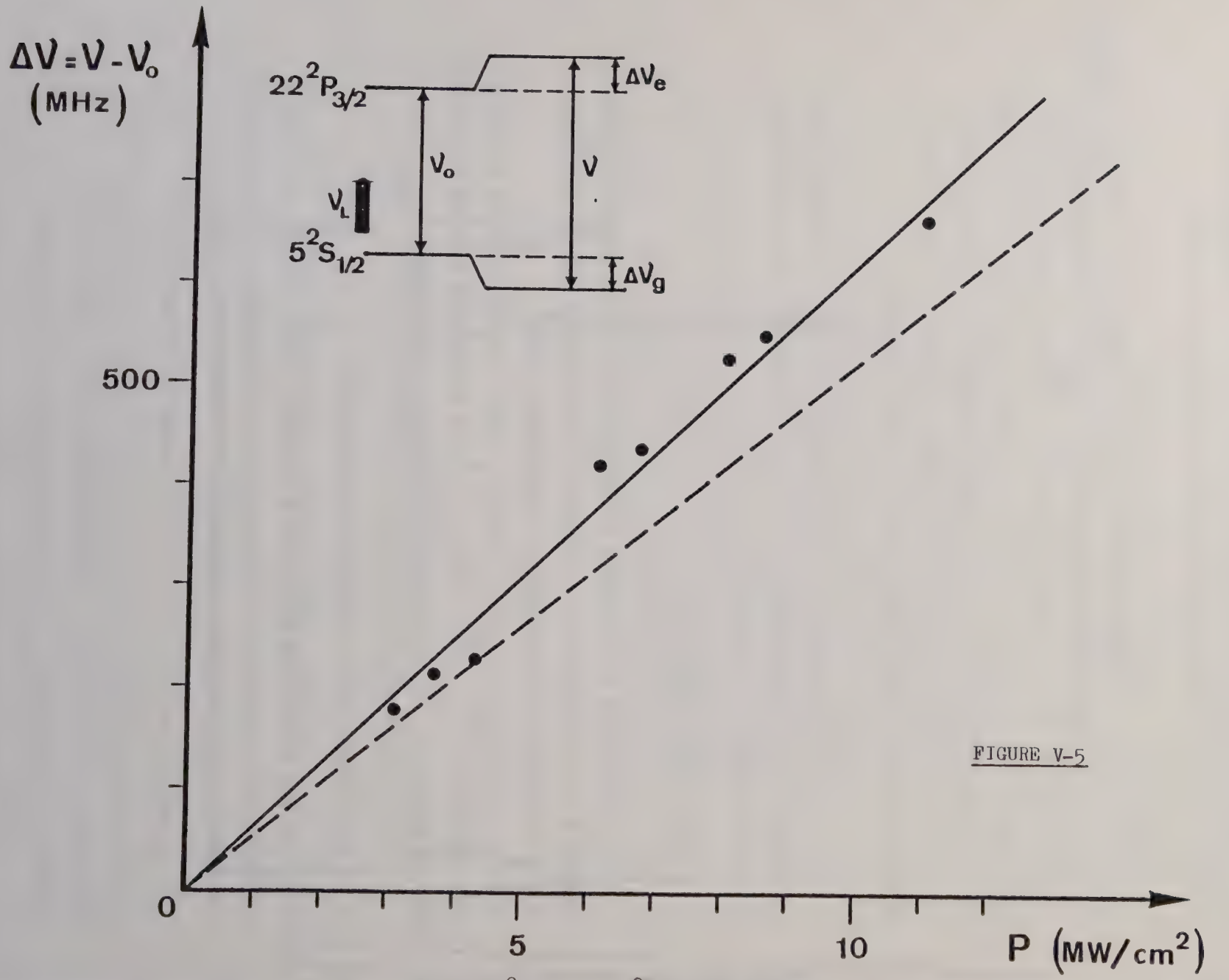


FIGURE V-5

Déplacement global $\Delta\nu$ de la transition $5\ ^2S_{1/2} \rightarrow 22\ ^2P_{3/2}$ en fonction de la puissance infrarouge P .
(----- déplacement calculé)

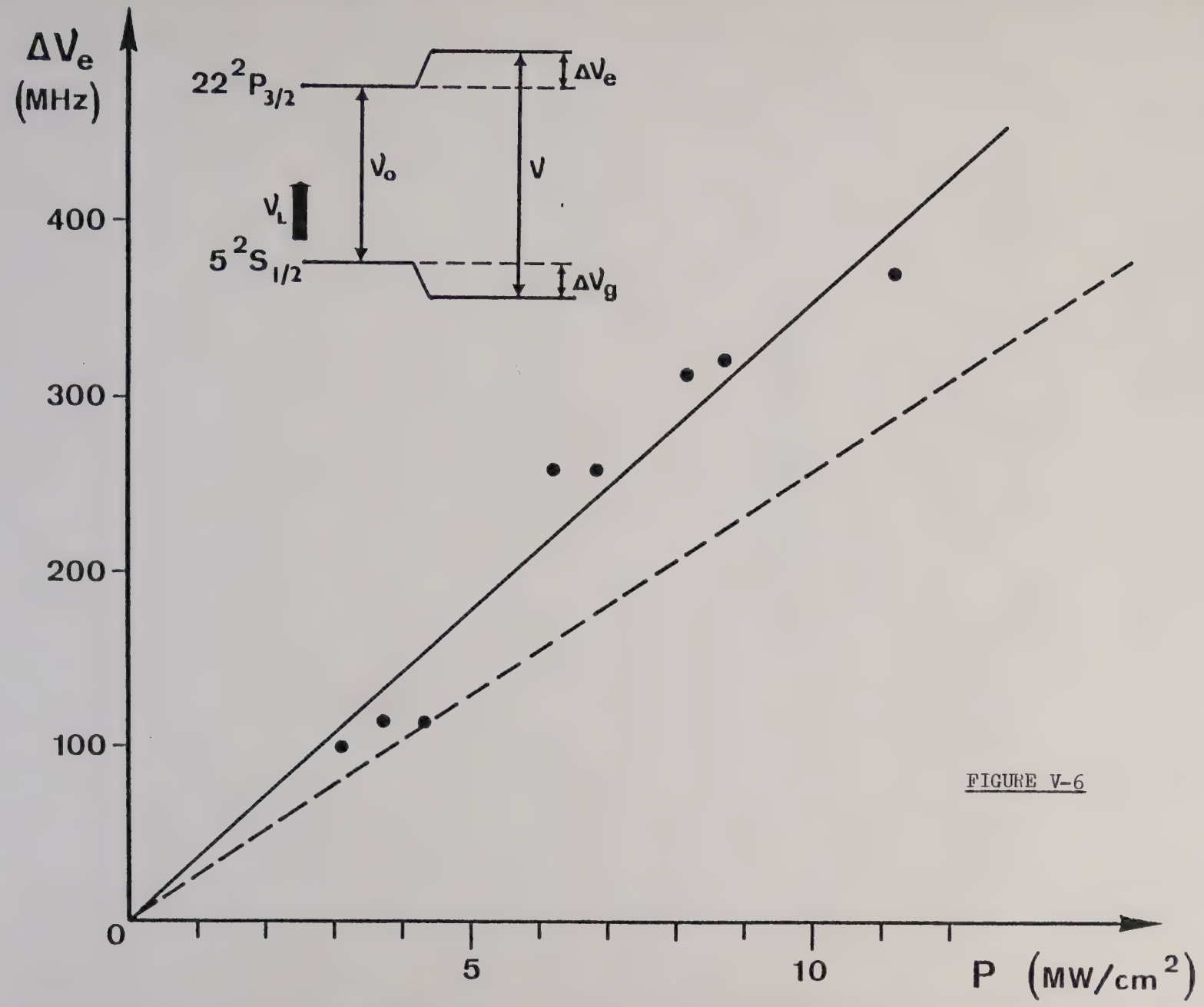


FIGURE V-6

Déplacement en énergie $\Delta\nu_e$ du niveau $22\ ^2P_{3/2}$ en fonction de la puissance infrarouge P (---- déplacement calculé).

Compte tenu des erreurs systématiques, difficiles d'ailleurs à évaluer, que peut entraîner d'une part la mesure assez délicate de la densité de puissance et, d'autre part, l'évaluation du déplacement $\Delta\nu_g$, on peut dire que l'accord entre la théorie et l'expérience est relativement bien vérifié.

La Figure V 6 représente le déplacement $\Delta\nu_e$ du niveau $22\,^2P_{3/2}$ en fonction de la puissance P (elle est déduite de la Figure V 5 en enlevant le déplacement $\Delta\nu_g$ du niveau fondamental).

CONCLUSION GENERALE

L'ensemble des travaux qui constituent cette thèse a été décrit en détail tout au long des chapitres précédents. A la fin de chacun d'eux des conclusions partielles ont été tirées faisant le bilan des résultats qui venaient d'être exposés. Aussi, nous contenterons-nous dans cette conclusion générale d'un bref rappel des acquisitions qui nous apparaissent les plus décisives, avant l'indication de nouvelles perspectives selon lesquelles de tels travaux pourraient être poursuivis.

Contrairement à l'opinion généralement répandue au commencement de nos expériences, les problèmes posés par la photoionisation des atomes en présence d'un champ électrostatique ne sont pas simples. Ils font en effet intervenir, avec des amplitudes diverses d'une espèce atomique à l'autre, des interactions nombreuses dont le traitement global est évidemment compliqué. Il s'agit, comme on sait, des interactions électrostatiques, des interactions spin-orbite, quand ce ne sont pas des interactions liées à l'existence de champs extérieurs tels les champs magnétiques résiduels ou les champs électromagnétiques. La difficulté réside bien souvent dans la caractérisation des effets résultant d'un type d'interaction. Nous avons toutefois pu mettre en évidence, dans plusieurs cas typiques, des manifestations de telles interactions, notamment dans l'observation de profils dissymétriques liés à des couplages états discret - continuum dont l'origine a pu être attribuée soit à l'interaction électrostatique au voisinage de la limite d'ionisation en champ nul, soit à l'interaction de couplage

spin-orbite au voisinage de la limite classique d'ionisation en présence d'un champ. Dans ce dernier cas, l'effet n'a pu être observé qu'avec un alcalin lourd (Rb) et grâce aux techniques de spectrométrie laser à haute résolution dont nous nous étions dotés préalablement.

Une autre manifestation de l'interaction spin-orbite a pu être décelée dans l'observation d'un effet original de stabilisation temporelle d'un état atomique excité en présence d'un champ électrique.

Dans un autre domaine, l'effet de petites perturbations sur le spectre de photoionisation en présence de champ électrique a donné lieu à l'observation de phénomènes aussi saisissants que l'apparition de résonances étroites et bien caractérisées dans le cas de la présence de champs magnétiques résiduels croisés aussi faibles que 0,8 gauss. L'origine a pu en être attribuée à l'interaction diamagnétique qui couple les états non liés des divers continuums.

Enfin des déplacements lumineux d'un caractère particulier, mettant en oeuvre des interactions essentiellement non résonnantes avec le rayonnement électromagnétique, ont pu être observés et étudiés très systématiquement.

Ces résultats ont confirmé certaines prévisions du modèle théorique élaboré par C. Cohen-Tannoudji et ses collaborateurs, lequel permet de rendre compte de l'ensemble des effets du rayonnement électromagnétique sur les électrons, pourvu que leur énergie de liaison soit faible comparativement à celle des photons avec lesquels ils interagissent.

S'agissant des perspectives encore ouvertes par ce champ de recherche, il faut évoquer les expériences du même type qui pourraient être faites sur l'atome d'hydrogène, lequel n'étant assujetti qu'à une interaction exactement coulombienne,devrait, comme on l'a vu, montrer

des effets dramatiquement différents.

En outre, l'interaction des atomes très excités avec des champs magnétiques très intenses, tels que les énergies mises en jeu soient du même ordre que les énergies de liaison, reste un domaine d'investigation expérimentale aussi bien que théorique encore très ouvert.

BIBLIOGRAPHIE

[1] P. Jacquinot et R. Klapisch, Rep. Prog. Phys. 42, 773 (1979).

[2] G. Huber, F. Touchard, S. Büttgenbach, C. Thibault, R. Klapisch, H. T. Duong, S. Liberman, J. Pinard, J. L. Vialle, P. Juncar and P. Jacquinot, Phys. Rev. C 18, n°5, 2342 - 54 (1978).

[3] H.A. Bethe et E.E. Salpeter, Quantum Mechanics of one and two-electron Atoms, Springer-Verlag, Berlin (1957).

[4] T.F. Gallagher, S.A. Edelstein and R.M. Hill, Phys. Rev. Lett. 35, 644 (1975).

[5] T.F. Gallagher, S.A. Edelstein and R.M. Hill, Phys. Rev. A 15, 1945 (1977).

[6] T.F. Gallagher, R.E. Olson, W.E. Cooke, S.A. Edelstein and R.M. Hill, Phys. Rev. A 16, 441 (1977)

[7] F. Gounand, J. Cuvellier, P.R. Fournier and J. Berlande, Phys. Lett. A 59, 23 (1976).

[8] F. Gounand, P.R. Fournier and J. Berlande, Phys. Rev. A 15, 2212 (1977).

[9] S. Haroche, La Recherche, 9, Sept. 1978, 733 (1978).

[10] S. Feneuille, S. Liberman, J. Pinard et P. Jacquinot, C. R. Acad. Sci. Paris, 284 B, 291 (1977).

[11] G. Wentzel, Z. Physik, 38, 518 (1926).

[12] H.A. Kramers, Z. Physik, 39, 828 (1926).

[13] L. Brillouin, C. R. Acad. Sci. Paris, 183, 24 (1926).

[14] C. Lanczos, Z. Physik, 65, 431 (1930).

[15] E. Luc-Koenig and A. Bachelier, J. Phys. B 13, 1743-47 (1980).

[16] E. Luc-Koenig and A. Bachelier, J. Phys. B 13, 1769-90 (1980).

[17] P. Jacquinot, S. Liberman and J. Pinard, in "Etats atomiques et moléculaires couplés à un continuum. Atomes et molécules hautement excités", p. 215, Editions du C. N. R. S., Paris (1977).

[18] P.M. Koch, Phys. Rev. Lett., 41, 99 (1978).

[19] D.A. Harmin, Phys. Rev. A 24, 2491-2512 (1981).

[20] S. Feneuille and P. Jacquinot, Atomic Physics, 6, (Plenum, New-York, 1979).

[21] L.D. Landau and E.M. Lifshitz, Quantum Mechanics : Non Relativistic Theory, (Addison Wesley, New-York, 1958).

[22] H. Rausch and V. Traubenberg, Z. Physik, 54, 307 (1929) ; 56, 254 (1929) ; 62, 289 (1930) ; 71, 291 (1931).

[23] D. Banks and J.G. Leopold, J. Phys. B 11, 37 (1978).

[24] D.S. Bailey, J.R. Hiskes and A.C. Rivière, Nucl. Fusion, 5, 41 (1965).

[25] K. Helfrich, Theor. Chim. Acta, 24, 271-82 (1972).

[26] G.J. Hatton, Phys. Rev. A 16, 1347-51 (1977).

[27] T. Yamabe, A. Tachibana and H.J. Silverstone, Phys. Rev. A 16, 877-90 (1977).

[28] M.J. Seaton, Mon. Not. R. Astron. Soc., 118, 504-18 (1958).

[29] E. Luc Koenig and A. Bachelier, Phys. Rev. Lett., 43, 921-4 (1979).

[30] M. Aymar, E. Luc-Koenig and F. Combet-Farnoux, J. Phys. B Atom. Molec. Phys., 9, 1279 (1976).

[31] U. Fano, Phys. Rev., 124, 1866-78 (1961).

[32] M.J. Seaton, Proc. Phys. Soc., 88, 801 (1966).

[33] K.T. Lu and U. Fano, Phys. Rev. A 2, 81 (1970).

[34] U. Fano, J. Opt. Soc. Am., 65, 979 (1975).

[35] U. Fano, Phys. Rev. A 24, 619 (1981).

[36] M.G. Littman, M.M. Kash and D. Kleppner, Phys. Rev. Lett., 41, 103-7 (1978).

[37] C. Cohen-Tannoudji, B.Diu et F.Laloë, Mécanique Quantique (Collection Enseignement des Sciences, 1973).

[38] M.L. Zimmerman, M.G. Littman, M.M. Kash and D. Kleppner, Phys. Rev. A 20, 2251-75 (1979).

[39] E. Luc-Koenig, S. Liberman and J. Pinard, Phys. Rev. A 19, 519 (1979).

[40] I.V. Komarov, T.P. Grozdanov and R.K.Janev, J. Phys. B : Atom. Molec. Phys., 13, L573-76 (1980).

[41] J.L. Vialle and H.T. Duong, J. Phys. B : Atom. Molec. Phys., 12, 1407 (1979).

[42] T.F. Gallagher, L.M. Humphrey, W.E. Cooke, R.M. Hill and S.A. Edelstein, Phys. Rev. A 16, 1098 (1977).

[43] T.H. Jeys, G.W. Foltz, K.A. Smith, E.J. Beiting, F.G. Kellert, F.B. Dunning and R.F. Stebbings, Phys. Rev. Lett., 44, 390 (1980).

[44] M.G. Littman, M.L. Zimmerman and D. Kleppner, Phys. Rev. Lett., 37, 486 (1976).

[45] V.S. Letokhov et V.P. Chebotayev, in "Nonlinear laser Spectroscopy", Springer Series in Optical Sciences, 4 (1977), édité par David L. Mac Adam (Springer Verlag Berlin).

[46] P. Jacquinot, in "High Resolution laser Spectroscopy", édité par K. Shimoda, Topics in Applied Physics, 13, 51 (Springer-Verlag, Berlin, 1976).

[47] U. Ganiel, A. Hardy and D. Treves, I.E.E.E.J. Quantum Electron. QE-12, 704 (1976).

[48] C.J. Buczek, R.J. Freiberg and M.L. Skolnicki, Proc. of the I.E.E.E., 61, 1411 (1973).

[49] L.E. Erickson and A. Szabo, Appl. Phys. Lett., 18, 433-35 (1971)

[50] F. Tréhin, G. Grynberg et B. Cagnac, Revue de Physique Appliquée, 13, 307 (1978).

[51] S. Liberman et J. Pinard, Optics Communication, 20, 344-7 (1977).

[52] T.W. Ducas, M.G. Littman, R.R. Freeman and D. Kleppner, Phy. Rev. Lett. 35, 366 (1975).

[53] H.T. Duong, S. Liberman and J. Pinard, Optics Communication, 18, 533 (1976).

[54] A.F.J. Van Raan, G. Baum and W. Raith, J. Phys. B : Atom. Molec. Phys., 9, L 173 (1976).

[55] R. F. Stebbings, C.J. Latimer, W.P. West, F.B. Dunning and T.B. Cook, Phys. Rev. A 12, 1453 (1975).

[56] S. Liberman and J. Pinard, Phys. Rev. A 20, 507 (1979).

[57] T.F. Gallagher, L.M. Humphrey, W.E. Cooke, R.M. Hill and S.A. Edelstein, Phys. Rev. A 16, 1098 (1977).

[58] T.F. Gallagher and W.E. Cooke, Phys. Rev. A 19, 694 (1979).

[59] T.F. Gallagher, L.M. Humphrey, R.M. Hill and S.A. Edelstein, Phys. Rev. Lett., 37, 1465 (1976).

[60] C.E. Moore, Atomic Energy Levels, Nat. Bur. Stand. (US GPO, Washington DC, 1958), Vol. II.

[61] W.E. Cooke and T.F. Gallagher, Phys. Rev. A 17, 1226 (1978).

[62] R.R. Freeman, N.P. Economou, G.C. Bjorklund and K.T. Lu, Phys. Rev. Lett., 41, 1463 (1978)

[63] C. Cohen-Tannoudji : Cours du Collège de France, Année 1975-76.

[64] J.M. Lecomte : Communication privée.

[65] S. Feneuille, S. Liberman, J. Pinard and A. Taleb, Phys. Rev. Lett., 42, 1404-06 (1979).

[66] S. Feneuille, S. Liberman, E. Luc-Koenig, J. Pinard and A. Taleb, Phys. Rev. A 25, 2853-56 (1982).

[67] R.R. Freeman and N.P. Economou, Phys. Rev. A 20, 2356-63 (1979).

[68] T.F. Gallagher, B.E. Perry, K.A. Safinya and W. Sandner, Phys. Rev. A 24, 3249 (1981).

[69] S. Feneuille, S. Liberman, E. Luc-Koenig, J. Pinard and A. Taleb, J. Phys. B 15, 1205-16 (1982).

[70] K.A. Safinya, J.F. Delpech,F.Gounand, W.Sandner and T.F.Gallagher, Phys. Rev. Lett., 47, 405 (1981).

[71] R.J. Damburg and V.V. Kolosov, J. Phys. B : Atom. Molec. Phys., 12, 2637 (1979).

[72] R.J. Damburg and V.V. Kolosov, Optics Comm., 24, n°2, 211 (1978).

[73] R.J. Damburg and V.V. Kolosov, Physics letters, 61A, n°4, 233 (1977).

[74] M.H. Rice and R.H. Good, J. Opt. Soc. Am., 52, 239-46 (1962).

[75] D.I. Blokhintsev, Mécanique Quantique, p. 387 (Masson, 1967).

[76] P.M. Koch and D.R. Mariani, Phys. Rev. Lett., 46, 1275 (1981).

[77] A. Frova, P. Handler, F.A. Germano and D.E. Aspnes, Phys. Rev., 145, 575-83 (1966).

[78] B.O. Seraphin and B. Bottka, Phys. Rev. A 139, 560-5 (1965).

[79] V.D. Kondratovitch and V.N. Ostrovskii, Zh. Eksp. Teor. Fiz., 79, 395 (1980) [Sov. Phys. J.E.T.P., 52, 198 (1981)]

[80] T.S. Luk, L. Di Mauro, T. Bergeman and H. Metcalf, Phys. Rev. Lett., 47, 83 (1981).

[81] W. Sandner, K.A. Safinya and T.F. Gallagher, Phys. Rev. A 23, 2448-56 (1981).

[82] A.R.P. Rau, J. Phys. B 12, L 193 (1979).

[83] H. Walther, in Frontiers in Laser Spectroscopy, Vol. 1, 127; Les Houches, session 27, édité par R. Balian, S. Haroche et S. Liberman (North Holland, Amsterdam, 1975).

[84] R.E. Grove, F.Y. Wu and S. Ezekiel, Phys. Rev. A 15, 227 (1977).

[85] T.W. Hansch, Atomic Physics, Vol. 3 ; Ed. S.J. Smith and G.K. Walters (Plenum Press, New-York, 1973).

[86] J.R.P. Angel and P.G.H. Sandars, Proc. Roy. Soc., London, 1968, A 305, 125.

[87] A. Crubellier : Communication privée.

[88] D.A. Harmin : Communication privée.

[89] J. Farley and R. Gupta, Phys. Rev. A 15, 1952 (1977).

[90] Y. Kato and B.P. Stoicheff, J. Opt. Soc. Am., 66, 490 (1976).

[91] P. Avan, C. Cohen-Tannoudji, J. Dupont-Roc, C. Fabre, J. Physique (Paris), 37, 993 (1976).

[92] M. Aymar : Communication privée.

Parvenu au terme de cet exposé, je voudrais exprimer ma profonde gratitude à Messieurs P. JACQUINOT, S. FENEUILLE et S. LIBERMAN pour l'accueil bienveillant qu'ils m'ont réservé au Laboratoire Aimé Cotton.

Je tiens à remercier Monsieur le Professeur P. JACQUINOT pour le constant intérêt qu'il a montré à la progression de ce travail.

Je remercie Messieurs les Professeurs J. BAUDON, M. DESAINTFUSCIEN et B. SANSAL de l'intérêt qu'ils ont manifesté pour cette thèse en acceptant de faire partie de ce jury.

J'ai eu la grande chance de travailler sous la direction de S. LIBERMAN. Il m'a beaucoup apporté par son expérience, sa connaissance et son enthousiasme. Je tiens à lui dire ici combien je lui en suis reconnaissant.

J'ai eu également la grande chance de travailler avec J. PINARD dont j'ai pu apprécier la compétence et la disponibilité. Je lui suis infiniment reconnaissant pour tout ce qu'il m'a appris.

Pour l'interprétation des résultats expérimentaux, j'ai collaboré étroitement avec E. LUC-KOENIG. Je tiens à lui exprimer mes sincères remerciements.

J'ai beaucoup apprécié l'assistance efficace et désintéressée de L. CABARET tout au long de cette étude.

Je remercie C. BABOULENE et G. FONTAINE qui se sont chargées avec un grand soin de la réalisation de ce mémoire.

Enfin, j'aimerais également associer dans mes remerciements, même s'il est impossible de les citer, tous ceux qui m'ont aidé au cours de ce travail et plus particulièrement l'ensemble du personnel technique.